

TESIS CARRERA DE DOCTORADO EN FÍSICA

**DOMINIOS MAGNÉTICOS Y RESPUESTA DINÁMICA
EN ALEACIONES FERROMAGNÉTICAS DE FePt**

Álvarez, Nadia
Doctorando

Dr. Alejandro Butera
Director

Prof. Dr. Etienne Goovaerts
Co-director

Miembros del Jurado

Dr. Javier Curiale (Centro Atómico Bariloche)
Dra. Gladys Nieva (Centro Atómico Bariloche)
Dra. Laura Steren (Centro Atómico Constituyentes)
Prof. Dr. Sabine Van Doorslaer (University of Antwerp)

Marzo de 2016

Laboratorio de Resonancias Magnéticas – Centro Atómico Bariloche
Experimental Condensed Matter Physics, Physics Department –
University of Antwerp

Instituto Balseiro
Universidad Nacional de Cuyo
Comisión Nacional de Energía Atómica
Argentina



University of Antwerp

Faculty of Science

Department of Physics

**Magnetic Domains and Dynamical Response in
Ferromagnetic FePt Alloys**

**Magnetische Domeinen en Dynamische Respons in
Ferromagnetische FePt Legeringen**

Thesis submitted in partial fulfilment of the requirements for the degree of *Doctor in Science: Physics* at the University of Antwerp, to be defended by:

Nadia Álvarez

Promotors:

Dr. Alejandro Butera

Prof. Dr. Etienne Goovaerts

San Carlos de Bariloche, 2016

A mis padres,

Resumen

Las películas delgadas de $\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50}$ ¹ fabricadas por métodos de *sputtering* a temperatura ambiente se forman en una fase magnética relativamente blanda y químicamente desordenada. En esta fase, denominada A1, los átomos se encuentran distribuidos al azar en una estructura cristalina de simetría fcc. Este sistema presenta algunas características en su comportamiento magnético que lo hacen altamente interesante para un estudio de sus propiedades físicas básicas. Nuestras películas en particular presentan un espesor crítico por encima del cual la estructura de dominios magnéticos cambia de planar a un arreglo periódico de bandas o tiras, conocidas como “*stripes*”, en las que existe una componente de la magnetización en la dirección normal al plano de la película que va alternando el sentido en distancias típicas de algunas decenas de nanómetros. Esta componente perpendicular es inducida por un término de la anisotropía magnética normal al plano la cual se debe a las contribuciones de efectos magnetoelásticos y magnetocristalinos.

En la primera parte de este trabajo presentamos los resultados obtenidos en una serie de películas delgadas de FePt con diferentes espesores ($9 \leq d \leq 94$ nm) en las que se mantienen las mismas condiciones de fabricación. La transición en la estructura de dominios magnéticos es acompañada por cambios notables en la respuesta magnética de las películas. El espesor crítico en el cual se produce esta transición (en esta serie encontramos $d_{\text{cr}} \sim 30$ nm) está dado principalmente por el cociente entre la anisotropía magnética perpendicular, K_{\perp} , y la energía desmagnetizante a través del factor de calidad $Q = \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2}$. Por lo tanto, se espera que ocurran cambios en la configuración magnética si se modifica la anisotropía perpendicular o la magnetización de saturación, M_s . Debido a la diferencia entre los coeficientes de expansión térmica del sustrato de Si y la película de FePt y la dependencia de M_s con la temperatura, T , se predice una reducción de Q al disminuir T . Mostramos, a partir del análisis de los resultados de medidas magnéticas entre $4 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$ que, efectivamente, existe un máximo en el valor del campo coercitivo que puede ser asociado a la transición entre dominios cuya magnetización se encuentra esencialmente en el plano (dominios planares) y tipo *stripes*. Esta

¹En adelante, a la composición equiatómica la llamaremos simplemente FePt.

transición no ocurre a una temperatura bien definida, sino que es gradual y depende del espesor de la película de forma consistente con un cambio en la anisotropía perpendicular inducido por tensiones en la interfaz. Tomando en consideración la variación de las tensiones y de la magnetización con la temperatura, desarrollamos un modelo que predice de forma satisfactoria el cambio del espesor crítico con la temperatura. Para comprender mejor los mecanismos de interacción dominantes en las distintas estructuras de dominios, realizamos un estudio del estado remanente a través de medidas de desmagnetización DC, viscosidad magnética y curvas δM . Encontramos que existe una fuerte correlación entre la estructura de dominios y el tipo de interacciones magnéticas presentes. Dominios planares son asociados con interacciones positivas, del tipo de intercambio, mientras que en dominios tipo *stripes* prevalecen las interacciones negativas del tipo dipolar. El comportamiento dinámico de esta serie también fue caracterizado usando espectroscopía de resonancia ferromagnética (FMR) en un rango amplio de frecuencias, desde 1 hasta 100 GHz. Como se espera, tanto el campo de resonancia como el ancho de línea aumentan junto con la frecuencia, mostrando anisotropía cuando el campo externo es aplicado en dirección paralela o perpendicular al plano. Con el objetivo de determinar el parámetro de amortiguamiento de la magnetización en función de la frecuencia de excitación, se analizó el ancho de línea en diferentes geometrías y encontramos un parámetro de amortiguamiento anisotrópico, $\alpha_{\parallel} = 0.025(1)$ cuando el campo se aplica en dirección paralela al plano de la película y $\alpha_{\perp} = 0.021(1)$ en el caso perpendicular.

En la segunda parte del trabajo, con el objetivo de analizar los efectos de las tensiones residuales en las propiedades magnéticas, depositamos una nueva serie de películas delgadas de FePt variando las condiciones de crecimiento. En este caso, se mantiene fijo el espesor nominal $d \sim 100$ nm pero se fue modificando la presión de Ar (P_{Ar}) dentro de la cámara de *sputtering* en el rango $3 \leq P_{\text{Ar}} \leq 13$ mTorr. En esta serie realizamos una caracterización estructural cuidadosa, la cual nos permitió obtener información sobre el tamaño y microdeformaciones de los granos, texturas y la evolución de la deformación en las muestras. Variando las condiciones de fabricación es posible mantener la textura cristalina aproximadamente constante, pero relajar las tensiones. Encontramos que las películas depositadas a menor presión de argón se encuentran sometidas a tensiones de compresión biaxiales. Estas favorecen la componente de la anisotropía en la dirección normal al plano de la película que da origen a dominios magnéticos en forma de *stripes*. Por otro lado, para P_{Ar} mayores, las tensiones se relajan y la configuración magnética cambia a una estructura de dominios con la magnetización en el plano.

Si bien existen estudios en películas delgadas de FePt en función del espesor o de las tensiones residuales, no se había investigado hasta el momento la dependencia del espesor crítico con los efectos de tensiones inducidas. La posibilidad de modificar de

forma controlada la deformación en las muestras nos permitió estudiar con detalle la transición de dominios magnéticos en el plano a una estructura de *stripes* y su dependencia con estos parámetros. Partiendo de lo aprendido en la serie anterior, se fabricaron nuevas series de películas en las cuales no solo modificamos las condiciones de depósito, sino también el rango de espesores para cada presión de Ar. Además de realizar una caracterización microestructural detallada, investigamos la respuesta magnética por magnetización DC e imágenes de microscopía de fuerza magnética (MFM), a través de las cuales determinamos el espesor crítico en función de P_{Ar} . Correlacionamos estos resultados con la caracterización estructural, lo que nos permitió construir un diagrama de fases de dominios magnéticos, en el que se relaciona el espesor crítico en función de Q . La aplicación un modelo teórico que contempla las contribuciones de energía de intercambio, de forma, paredes de dominio y anisotropía perpendicular nos permitió ahondar en la comprensión de los resultados experimentales.

Finalmente, habiendo establecido los mecanismos que dan origen a la estructura de dominios en *stripes*, intentamos profundizar en las propiedades de este tipo de sistemas. La aleación $Fe_{20}Ni_{80}$ (llamado Permalloy, o en su forma abreviada Py) también presenta dominios tipo *stripes* por encima de un cierto espesor crítico d_{cr} , originados por una componente de la anisotropía magnética perpendicular al plano. A pesar de esta similitud, algunas propiedades del Py, como el valor del espesor crítico y el período de los *stripes*, son significativamente más grandes que en FePt. Estas diferencias hacen que sea de interés investigar el comportamiento magnético en bicapas FePt/Py con espesores menores y mayores a d_{cr} . Para realizar este estudio se crecieron dos series de bicapas en las que se mantuvo fijo el espesor de una de las aleaciones mientras se variaba la restante. También se tuvo en consideración el orden en que se crecen las películas por lo cual fabricamos bicapas en las que el FePt es crecido por encima o por debajo del Py. A través de mediciones de microscopía MFM encontramos una única estructura de dominios en forma de *stripes*, aunque para algunas combinaciones de espesores hallamos una configuración de dos estructuras de *stripes* acoplados aproximadamente 45° . Experiencias de magnetometría de muestra vibrante y por efecto Kerr magneto-óptico nos permitieron separar el comportamiento magnético de la capa superior (la longitud de penetración en un experimento por efecto Kerr magneto-óptico es de $\sim 10 - 20$ nm) de la muestra. En general, encontramos un comportamiento singular, con un fuerte acople de intercambio cerca de la interfaz, pero no lo suficiente como para que los *stripes* en ambas capas roten y saturen en forma conjunta.

En síntesis, en el transcurso de esta tesis hemos caracterizado la transición en la estructura de dominios magnéticos y su dependencia con la anisotropía perpendicular a través del factor de calidad Q . A partir de los distintos estudios en películas delgadas de FePt, hemos sido capaces de modificar el espesor crítico en el cual ocurre

esta transición magnética de forma controlada, ya sea a través de la modificación de las condiciones de depósito, de la variación de la temperatura o incluso mediante el acople con una capa (Py) con características magnéticas similares.

Palabras clave: FePt, películas delgadas, ferromagnetismo, anisotropía magnética, interacciones magnéticas, constante de amortiguamiento, tensiones residuales, dominios magnéticos tipo *stripes*, espesor crítico.

Abstract

Fe₅₀Pt₅₀² ferromagnetic thin films fabricated by sputtering methods at room temperature tend to grow in a relatively soft magnetic phase, chemically disordered with the atoms randomly arranged in an fcc structure. This alloy shows several unique magnetic properties that makes it particularly interesting for a deeper study of the physical behavior. The main characteristic is the presence of a critical thickness above which the magnetic domain structure changes from planar to a periodic pattern of parallel in-plane magnetized regions, in which the magnetization has a relatively small component that points alternatively in different directions normal to the film plane. This domain pattern is usually known as stripe magnetic domain or simply “stripes”. The perpendicular component of the magnetization is induced by the presence of a magnetic anisotropy with the easy axis normal to the film plane, which originates in the joint contribution of magnetoelastic and magnetocrystalline effects.

In the first part of this work, we present different studies in a set of thin films with thicknesses in the range $9 \text{ nm} \leq d \leq 94 \text{ nm}$ in which we maintained the same growing conditions. As expected, a transition in the magnetic domain structure occurs at a critical thickness d_{cr} , which is accompanied by significant changes in the magnetic response of the films. The critical thickness for this transition (in this particular set of samples, we found $d_{cr} \sim 30 \text{ nm}$) depends on the Q -factor, $Q = \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2}$, defined as the ratio between the perpendicular magnetic anisotropy, K_{\perp} , and the demagnetizing energy. Therefore, a change in the domain structure is expected when the perpendicular anisotropy or the saturation magnetization, M_s , changes. Due to the different thermal expansion of the FePt alloy and the Si wafers used as substrates, and also the dependence of M_s with the temperature T , a reduction in Q is predicted when the temperature is lowered. From magnetic experiments measured at temperatures between $4 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$, we have effectively observed a variation in the coercive field, presenting a maximum value which can be associated to a transition from a structure of magnetic domains with the magnetization that stays essentially in the plane of the film, generally called in-plane domains, to stripe-like

²From now on, we are going to simply call the equiatomic composition FePt.

domains. The transition temperature range is broad and proportional to the film thickness, consistently with a change in the perpendicular anisotropy caused by an interfacial induced stress. A model that includes the temperature dependence of the strain and the magnetization, predicts correctly the observation of a larger critical thickness at lower temperatures. In order to have a better understanding of the dominant type of interaction in each kind of domain structure, we used the well known DC demagnetization (DCD) and isothermal remanent magnetization (IRM) remanence protocols, δM plots and magnetic viscosity measurements. We have observed a strong correlation between the domain configuration and the sign of the magnetic interactions. Planar domains are associated with positive exchange-like interactions, while stripe domains have a strong negative dipolar-like contribution. The dynamical behavior of the same set of films has been characterized using ferromagnetic resonance spectroscopy in a broad range of frequencies, from 1 to 100 GHz. As expected, the increase in frequency is accompanied by larger resonance fields and linewidths, displaying an anisotropic response when the external applied field is rotated from the in-plane to the out-of-plane direction. In order to determine the dependence of the damping parameter of the magnetization with the excitation frequency, we analyzed the linewidths in different geometries and found an anisotropic damping parameter, $\alpha_{\parallel} = 0.025(1)$ when the field is applied parallel to the plane of the film and $\alpha_{\perp} = 0.021(1)$ in the perpendicular case.

In the second part of this work, with the aim of analyzing the effects of residual stresses in the magnetic properties, we fabricated a second set of FePt thin films in which we varied the growing conditions. In this case, we kept the nominal thickness constant $d \sim 100$ nm but varied the Ar pressure (P_{Ar}) in the sputtering chamber in the range $3 \leq P_{\text{Ar}} \leq 13$ mTorr. In this series we performed a thorough structural characterization, which allowed us to obtain information about the size and microstrain of the grains, texture and the evolution of residual strain in the films. We have found that by varying the growing conditions it is possible to maintain approximately constant the crystalline texture but to relax the residual in-plane stresses. The films deposited at lower argon pressures are subjected to biaxial compressive stresses. The corresponding strain produces a component of the anisotropy in the direction normal to the film plane which gives rise to stripe-like magnetic domains. For higher P_{Ar} , stresses are relaxed and the magnetic configuration changes to a planar structure.

Although there are systematic studies on FePt thin films in which the thicknesses or the residual stress are individually changed, up to now there were no investigations of the dependence of d_{cr} with the induced residual stress. The ability to modify in a controlled manner the deformation in the film, allowed us to study in detail the transition from in-plane magnetic domains to a stripe-like structure and its dependence on these parameters. For this purpose a new series of films were

fabricated, in which we modified not only the deposition conditions, but also the range of thicknesses for each Ar pressure. In addition to performing a detailed microstructural characterization, we investigated the magnetic response through DC magnetization experiments and images taken with a magnetic force microscope (MFM), which helped us to determine the critical thickness dependence on P_{Ar} . We correlated these results with the structural characterization, which allowed us to construct a phase diagram of magnetic domains, where the critical thickness is plotted as a function of Q . Most of the obtained experimental results could be satisfactorily explained by using a theoretical model that takes into account the energy contribution of exchange, shape, domain walls and perpendicular anisotropy.

Finally, having established the mechanisms that give rise to a stripe-like domain pattern, we grew another set of samples with the aim of a better understanding of the properties of this kind of systems. The alloy $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ (called Permalloy, or simply Py in the abbreviated form) also presents a stripe-like domain structure above a certain critical thickness, also caused by a perpendicular component of the magnetic anisotropy. Despite this similarity with FePt, some properties of Py, such as the value of the critical thickness and the period of the stripes, are significantly larger than in FePt. These differences suggest the need to investigate the magnetic behavior of FePt/Py bilayers with smaller and larger thicknesses than the critical value in which the domain structure changes. For this study we deposited two sets of bilayers in which the thickness of one of the alloys was fixed while the other was varied. The growing sequence of the films composing the bilayer was investigated in samples in which either FePt or Py was in contact with the Si substrate. Through MFM microscopy measurements we have observed a single stripe domain structure in most films, but for some combinations of thicknesses we could find a configuration of two coupled stripe structures rotated approximately 45° . Vibrating sample and Magneto-optic Kerr effect magnetometry, allowed us to separate the magnetic behavior of the top layer (MOKE is only sensitive to a penetration depth $\sim 10 - 20$ nm). In general, we found a singular magnetic behavior, with a relatively strong exchange coupling near the interface with a magnitude that decreases near the sample surface, allowing the stripe structure in the top part of the upper layer to behave differently than the coupled bilayer.

In summary, in the course of this thesis we have characterized the transition in the structure of magnetic domains and its dependence with the perpendicular anisotropy through the quality factor Q . From the various studies on FePt thin films, we have been able to modify the critical thickness of the magnetic transition in a controlled manner, either through modifying the deposition conditions, by varying the temperature variation or even by coupling the sample with a layer of a material with similar magnetic characteristics.

Keywords: FePt, thin films, ferromagnetism, magnetic anisotropy, magnetic interactions, damping constant, residual stress, stripe magnetic domains, critical thickness.

Samenvatting

Fe₅₀Pt₅₀³ ferromagnetische dunne films, door middel van sputtering gefabriceerd bij kamertemperatuur, groeien bij voorkeur in een relatief zachte magnetische fase die chemisch wanordelijk is met atomen die willekeurig in een fcc rooster geplaatst zijn. Deze legeringen vertonen een aantal unieke magnetische eigenschappen die ze bijzonder interessant maken voor een diepgaande studie van hun fysisch gedrag. De belangrijkste karakteristiek is het optreden van een kritische laagdikte waarboven de magnetische domeinstructuur verandert van planair naar een periodisch patroon van evenwijdige in het vlak gemagnetiseerd gebieden, waarin de magnetisatie een vrij kleine transversale component bezit die alternerend in verschillende zin loodrecht uit het vlak wijst. Dit domeinpatroon is in het algemeen bekend als een gestreept magnetisch domein (“stripe magnetic domain”) of eenvoudigweg als “stripes”. De loodrechte component van de magnetisatie ontstaat in aanwezigheid van een magnetische anisotropie met de gemakkelijke as (“easy axis”) loodrecht op het filmvlak, hetgeen resulteert uit de optelling van bijdragen van magneto-elastische en magneto-kristallijne effecten.

In het eerste deel van dit werk, stellen we enkele studies voor in een set van films met laagdikten in het gebied $9 \text{ nm} \leq d \leq 94 \text{ nm}$ waarbij we identieke groeivoorwaarden hebben aangehouden. Zoals verwacht treedt er in de domeinstructuur een overgang op bij de kritische laagdikte d_{cr} , die samengaat met significante veranderingen in de magnetische respons van de films. De kritische dikte voor deze overgang (in dit specifieke set van preparaten vonden we $d_{\text{cr}} \sim 30 \text{ nm}$) hangt af van de Q -factor, $Q = \frac{K_{\perp}}{(2\pi M_s^2)}$, gedefinieerd als de verhouding tussen de loodrechte magnetische anisotropie, K_{\perp} , en de demagnetisatieënergie. Daarom wordt een verandering in de domeinstructuur verwacht bij verandering van ofwel de loodrechte anisotropie, ofwel de saturatiemagnetisatie, M_s . Omwille van het verschil in thermische uitzetting van de FePt legering vergeleken met de als substraat gebruikte Si-wafers, en ook omwille van de afhankelijkheid van M_s van de temperatuur T , wordt een vermindering van Q voorspeld bij verlaging van de temperatuur. In magnetische experimenten gemeten bij temperaturen in het gebied 4

³In het volgende zullen we deze equiatomaire samenstelling eenvoudigweg FePt noemen.

$K \leq T \leq 300$ K, hebben we inderdaad een verandering waargenomen van het coërcieve veld. Dit bereikt een maximum waarde die in verband kan worden gebracht met een overgang van een structuur van magnetische domainen met magnetisatie essentieel in het vlak van de film, gewoonlijk “in-plane” domeinen genoemd, naar de stripe-domeinen. Het temperatuursgebied van de overgang is breed en evenredig met de filmdikte, hetgeen overeenstemt met de veranderende loodrechte anisotropie veroorzaakt door de spanning aan de tussenlaag. Een model, waarin de temperatuursafhankelijkheid van spanning en magnetisatie is opgenomen, levert een juiste voorspelling van de grotere kritische laagdikte bij verlaging van de temperatuur. Om een beter begrip te bekomen aangaande het dominante type van interacties in elk van de domeinstructuren, hebben we de gekende protocols van DC demagnetisering (DCD) en isotherme remanente magnetisering (IRM), alsook δM plots en magnetische-viscositeitsmetingen toegepast. We observeerden een sterke correlatie tussen de domeinconfiguratie en het teken van de magnetische interacties. Planaire domeinen hangen samen met positieve exchange-type interacties, terwijl stripe-domeinen een sterke negatieve dipool-type bijdrage vertonen. Het dynamisch gedrag in hetzelfde set van films werd met behulp van ferromagnetische resonantie (FMR) spectroscopie gekarakteriseerd in een breed frequentiegebied van 1 tot 100 GHz. Zoals verwacht, vindt men bij hogere frequenties ook hogere resonantievelden en grotere lijnbreedten die een anisotroop gedrag vertonen bij rotatie van het aangelegde veld van evenwijdig naar loodrecht op het vlak. Om de frequentieafhankelijk van de dampingsparameter van de magnetisatie te bepalen, hebben we de lijnbreedten in verschillende geometrieën nagegaan. Hieruit vonden we een anisotrope dampingsparameter, met $\alpha_{\parallel} = 0.025(1)$ voor het veld evenwijdig aan het filmvlak, en $\alpha_{\perp} = 0.021(1)$ in het loodrechte geval.

In het tweede deel van dit werk, en dit met het doel om de effecten van residuele spanningen op de magnetische eigenschappen te analyseren, maakten we een tweede reeks dunne films aan waarin de groeicondities werden gevarieerd. In dit geval hielden we de nominale laagdikte constant, $d \sim 100$ nm, maar pasten we de Ar-druk (P_{Ar}) in de sputterkamer aan in het gebied $3 \text{ mTorr} \leq P_{\text{Ar}} \leq 13 \text{ mTorr}$. In deze reeks voerden we een grondige karakterisering uit die toeliet om informatie te bekomen aangaande de grootte en de microvervorming van de korrels, en over textuur en evolutie van de residuele spanning in de films. We stelden vast dat onder variërende groeicondities het mogelijk is om de kristallijne textuur benaderend gelijk te houden en toch de residuele spanning in het vlak van de film te verminderen. De films gegroeid by lage argondrukken staan onder biaxiale compressieve spanning. De overeenkomstige vervorming levert een bijdrage aan de anisotropie in de richting loodrecht op het filmvlak hetgeen aanleiding geeft tot stripe-type magnetische domeinen. Voor hogere P_{Ar} waarden worden de spanningen verminderd en levert dit een magnetische

configuratie van het planaire type.

Er bestaan systematische studies van FePt dunne films waarin hetzij de dikte, hetzij de residuele spanning werd veranderd, maar tot nu toe werd niet onderzocht hoe d_{cr} afhangt van de geïnduceerde residuele spanning. De mogelijkheid die we ontdekten om op gecontroleerde wijze de vervorming van de film te veranderen, heeft toegelaten om in detail de overgang van in-plane magnetische domeinen naar de stripe-structuur te bestuderen, en ook te kijken hoe de overgang afhangt van de vermelde parameters. Hiertoe werden nieuwe reeksen van films aangemaakt waarin we niet enkel de groeicondities aanpasten, maar ook het gebied van filmdiktes gegroeid bij elk van de Ar-drukken. Naast de gedetailleerde karakterisering van de microstructuur hebben we ook de magnetische respons onderzocht met behulp van DC magnetiseringsexperimenten en beelden genomen met een magnetische-krachtmicroscop (magnetic force microscope: MFM) hetgeen ons toeliet om de P_{Ar} -afhankelijkheid van de kritische dikte te bepalen. We gingen de correlatie na tussen deze resultaten en deze van structurele karakterisering, hetgeen ons toeliet om een fasediagram op te stellen voor de magnetische domeinen waarin de kritische dikte als functie van Q wordt uitgezet. In het algemeen konden de experimentele resultaten op bevredigende wijze worden verklaard op basis van een theoretisch model dat rekening houdt met de energiebijdrage van exchange, vorm, domeingrenzen (domain walls) en loodrechte anisotropie.

Tenslotte, nadat we de mechanismen hadden vastgesteld die tot de stripe-domein-patternen aanleiding geven, hebben we nog een andere reeks preparaten bereid om een beter inzicht te krijgen in de eigenschappen van deze systemen. De legering $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ (ook “permalloy” genoemd, of afgekort Py) vertoont ook een stripe-type domeinstructuur boven een bepaalde kritische dikte, opnieuw veroorzaakt door een loodrechte component van de magnetische anisotropie. Ondanks de gelijkenis tussen beide materialen, zijn sommige eigenschappen van Py, zoals de kritische dikte en de periode van de stripe-structuur, beduidend groter dan in FePt. Deze verschillen hebben ertoe geleid om de studie van het magnetische gedrag van FePt/Py dubbellagen aan te vatten. Hiertoe hebben we twee sets van dubbellagen neergelegd waarin telkens de dikte van één van de legeringen werd vast gehouden en de andere gevarieerd. Er werden zowel preparaten bestudeerd waarin FePt als Py in contact was met het Si-substraat, door keuze van de groeisequentie. In MFM-metingen hebben we één enkele stripe-domeinstructuur geobserveerd in de meest van deze films, maar voor sommige combinaties van de laagdiktes vonden we een configuratie met twee gekoppelde stripe-domeinen, gelegen op een onderlinge hoek van ongeveer 45° . “Vibrating sample” magnetometrie (VSM) en magneto-optisch Kerr magnetometrie (MOKE) lieten ons toe om het magnetisch gedrag van de toplaag te onderscheiden (MOKE heeft een indringdiepte van slechts 10-20 nm). In het algemeen hebben we

een uitzonderlijk magnetisch gedrag vastgesteld, met een relatief sterke exchange-koppeling dicht bij de grenslaag met een sterkte die afneemt dicht bij het oppervlak van het preparaat. Dit laat toe dat een stripe-structuur in het hoogste deel van de bovenste laag zich verschillend kan gedragen dan in de gekoppelde dubbellaag.

Samenvattend hebben we in de loop van dit doctoraatswerk de overgang gekarakteriseerd in de structuur van magnetische domeinen, en hoe deze overgang afhangt van loodrechte anisotropie via de kwaliteitsfactor Q . Op basis van de uitgevoerde studies op FePt dunne films toonden we aan dat de kritische dikte voor de magnetische overgang op een gecontroleerde manier kan gewijzigd worden, hetzij door de aanpassing van de depositiecondities, door temperatuurvariatie, of zelfs door koppeling van het preparaat met een laag uit een materiaal met aanverwante magnetische eigenschappen.

Keywords: FePt, dunne films, ferromagnetisme, magnetische anisotropie, magnetische interacties, dempingsparameter, residuele spanning, stripe-type magnetische domeinen, kritische laagdikte.

Índice de contenidos

Índice de contenidos	xix
Índice de símbolos	xxiii
1. Introducción general	1
1.1. Estructura cristalina y características generales del FePt	1
1.1.1. Características estructurales de películas delgadas de FePt	5
1.2. Interacciones y anisotropías en materiales ferromagnéticos	7
1.2.1. Anisotropía magnetocristalina	9
1.2.2. Anisotropía de forma	11
1.2.3. Anisotropía por tensiones	12
1.2.4. Mezcla de anisotropías en una película delgada	13
1.3. Dominios magnéticos	15
1.3.1. Paredes de dominio	15
1.3.2. Dominios magnéticos tipo “ <i>stripes</i> ”	16
1.4. Crecimiento de películas delgadas	20
1.4.1. Crecimiento de granos y textura	20
1.4.2. Origen de las tensiones	21
2. Técnicas de fabricación y de caracterización estructural y magnética	25
2.1. Fabricación	25
2.2. Técnicas de caracterización estructural y de composición química	27
2.2.1. Difracción de rayos-X	27
2.2.2. Técnicas espectroscópicas	31
2.3. Medidas magnéticas	33
2.3.1. Técnicas de magnetometría	33

2.3.2. Microscopio de fuerza atómica/magnética (AFM/MFM)	36
2.3.3. Resonancia ferromagnética (FMR)	38
3. Espesor crítico e interacciones magnéticas en películas delgadas de FePt	41
3.1. Motivaciones y objetivos	41
3.2. Medidas Magnéticas	42
3.2.1. Dependencia con la temperatura del espesor crítico	42
3.2.2. Medidas de remanencia y viscosidad magnética	51
3.3. Medidas de resonancia ferromagnética	67
3.3.1. Dinámica de la relajación en películas ferromagnéticas de FePt	67
3.4. Conclusiones	74
4. Origen de la anisotropía perpendicular en películas delgadas de FePt	77
4.1. Motivación y objetivos	77
4.2. Fabricación	77
4.3. Caracterización estructural	80
4.3.1. Difracción de rayos X	81
4.3.2. Figura de polos y tensiones residuales por el método $\sin^2 \psi$	86
4.4. Medidas Magnéticas	94
4.4.1. Magnetización DC y medidas de microscopía magnética	94
4.4.2. Determinación de la anisotropía perpendicular	97
4.5. Conclusiones	104
5. Diagrama de fases magnético para la formación de dominios en películas delgadas de FePt	105
5.1. Motivaciones y objetivos	105
5.2. Fabricación y caracterización por difracción de rayos-X	105
5.3. Medidas magnéticas	108
5.3.1. Magnetización DC y medidas de microscopía magnética	109
5.3.2. Determinación de la anisotropía perpendicular	111
5.3.3. Determinación del espesor crítico en función del factor de calidad	115
5.4. Conclusiones	119

6. Acople magnético de dominios tipo <i>stripes</i> en bicapas $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}/\text{FePt}$	121
6.1. Motivación y objetivos	121
6.2. Fabricación de las bicapas y caracterización por difracción de rayos-X	121
6.3. Medidas de magnetización	125
6.3.1. Curvas de magnetización DC, medidas de VSM y MOKE	126
6.3.2. Microscopía de fuerza magnética	132
6.4. Conclusiones	142
7. Conclusiones y perspectivas	143
A. Caracterización del blanco de FePt	149
A.1. Determinación de la fase cristalográfica por difracción de rayos X	149
A.2. Determinación del módulo elástico y experimentos de lámina vibrante	151
Publicaciones	165
Publicaciones	167
Agradecimientos	177

Índice de símbolos

Compuestos y magnitudes relacionadas:

$\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50}$: FePt.

$\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$: Permalloy.

A1: Fase cristalina cúbica fcc, químicamente desordenada, de la aleación FePt.

L1₀: Fase cristalina tetragonal fct, químicamente ordenada, de la aleación FePt.

L1₂: Fase cristalina tetragonal fct, químicamente ordenada, de la aleación $\text{Fe}_3\text{Pt}/\text{FePt}_3$.

a : Parámetro de red.

d_{hkl} : Distancia interplanar.

Técnicas y equipos:

EDS: Fluorescencia de rayos-X por energía dispersiva.

XPS: Espectroscopía de fotoelectrones emitidos por rayos-X.

RBS: Espectrometría de retrodispersión Rutherford.

TEM: Microscopio de transmisión de electrones.

VSM: Magnetómetro de muestra vibrante.

SQUID: Dispositivo superconductor de interferencia cuántica.

MOKE: Magnetometría por efecto Kerr magneto-óptico.

IRM: Magnetización remanente isotérmica.

DCD: Desmagnetización DC.

MFM: Microscopio de fuerza magnética.

FMR: Resonancia ferromagnética.

Magnitudes asociadas a las muestras y sus propiedades:

d : Espesor de la película.

d_{cr} : Espesor crítico.

P_{Ar} : Presión de argón.

E_m : Energía magnética.

E_S : Energía magnetostática por unidad de superficie.

H_{coer} : Campo coercitivo.

H_{c0} : Campo coercitivo a $T = 0$ K.

H_{IRM} : Campo coercitivo de reversión.

- H_f : Campo de fluctuaciones.
 $H_{s\parallel}, H_{s\perp}$: Campos de saturación en el plano y perpendicular.
 H_{rot} : Campo de anisotropía rotacional.
 H_{eff} : Campo magnético efectivo.
 $H_{r\parallel}, H_{r\perp}$: Campos de resonancia para H paralelo y perpendicular al plano de la película.
 H_{eff} : Campo de anisotropía efectivo.
 ΔH : Ancho de línea en un experimento de resonancia magnética.
 M_s : Magnetización de saturación.
 $M_{\text{rem}}, M_s^{\text{rem}}$: Magnetización remanente medida después de saturar la muestra.
 M_r : Magnetización medida durante el experimento IRM.
 m_r : M_r normalizada al valor de saturación.
 M_d : Magnetización medida durante el experimento DCD.
 m_d : M_d normalizada al valor de saturación.
 M_{\perp} : Componente de la magnetización perpendicular al plano de la película.
 K_{\perp} : Constante de anisotropía magnética perpendicular.
 K_{MC} : Constante de anisotropía magnetocristalina.
 K_{eff} : Constante de anisotropía efectiva.
 K_{ME} : Constante de anisotropía magnetoelástica.
 Q : Factor de calidad o factor- Q .
 T_{amb} : Temperatura ambiente.
 T_C : Temperatura de Curie.
 T_B : Temperatura de bloqueo.
 T_{sp} : Temperatura crítica de transición en la estructura de dominios magnéticos.
 l_e : Longitud de intercambio.
 A_Z : Factor de anisotropía de Zener.
 S : Parámetro de viscosidad magnética.
 α_i : Parámetro de interacción.
 V_{ac} : Volumen de activación.
 σ : Tensión.
 ε : Deformación.
 E : Módulo de Young.
 ν : Coeficiente de Poisson.
 $\lambda_s/2$: Semiperíodo de los *stripes*.
 γ : Factor giromagnético.
 g : Factor de desdoblamiento espectroscópico o factor- g .
 $\alpha_{\parallel}, \alpha_{\perp}$: Parámetros de amortiguamiento anisotrópico paralelo y perpendicular.
 J : Constante de intercambio.
 A : *Exchange stiffness constant* o constantante de intercambio.

$\lambda_{\text{sat}} = \lambda$: Coeficiente de magnetostricción en saturación.

α_s, α_f : Coeficientes de expansión térmica del sustrato y la película.

Constantes:

k_B : Constante de Boltzmann.

\hbar : Constante de Planck reducida.

μ_B : Magnetón de Bohr.

Capítulo 1

Introducción general

1.1. Estructura cristalina y características generales del FePt

La aleación ferromagnética intermetálica FePt ha despertado un gran interés en los últimos años, especialmente en el área de almacenamiento de información en medios magnéticos. La fase cristalina ordenada (llamada L1₀) posee propiedades singulares, tales como una gran anisotropía magnetocristalina ($K_{MC} \sim 7 \times 10^7$ erg/cm³), alta magnetización de saturación ($M_s \sim 1130$ emu/cm³) y un gran campo coercitivo ($H_{coer} \lesssim \frac{2K_a}{M_s} \sim 12$ T) [1]. En la actualidad, el material utilizado para grabación magnética perpendicular¹ es la aleación CoCrPtB, en donde ya no es posible reducir el tamaño de los dominios magnéticos (cada uno equivalente a un bit de información) porque está llegando a su límite superparamagnético. Existe una gran cantidad de publicaciones en la búsqueda de un nuevo material o sistema [2–5], con el objetivo de mejorar la capacidad de los discos rígidos actuales. El factor de estabilidad térmica $K_{eff}V_{part}/k_B T$, donde K_{eff} es la anisotropía efectiva y V_{part} es volumen de activación del grano o partícula, se acerca a valores ~ 50 , que es lo que se requiere para una vida media de 10 años de la información así almacenada [6]. La alta anisotropía en el FePt L1₀ aumenta el valor del factor de estabilidad térmica lo que tiene como resultado un gran potencial de mejora en la densidad de almacenamiento. Sin embargo, las películas de FePt fabricadas por métodos de *sputtering* a temperatura ambiente se forman en una fase cristalina metaestable de simetría fcc y magnéticamente blanda (llamada A1). El factor que limita la aplicación del FePt es la alta temperatura de templado que se necesita para transformar películas depositadas a temperatura ambiente de la fase químicamente desordenada fcc a la fase cristalina

¹La grabación magnética perpendicular es un método para la grabación de datos en discos rígidos. Básicamente, consiste en magnetizar los dominios magnéticos (o bits de información) en la dirección perpendicular a la superficie del disco rígido. De esta forma se tiene una distribución más eficiente de los bits, lo que resulta en un aumento significativo en la densidad de almacenamiento.

ordenada, tetragonal $L1_0$ [7, 8]. Quizás por no contar con aplicaciones tecnológicas inmediatas, la fase desordenada A1 no ha sido estudiada con igual profundidad que la $L1_0$. Sin embargo, la investigación de las propiedades estructurales y magnéticas del FePt tanto en la fase $L1_0$ como en la A1 tiene un profundo interés tecnológico y científico.

El mecanismo por el cual las películas de FePt se ordenan químicamente es muy dependiente del método de fabricación y del tratamiento térmico que se efectúe. En general, se parte de la fase desordenada A1 y se realiza un templado a altas temperaturas de modo de producir el reordenamiento atómico a través de una transformación de primer orden [9]. Es posible fabricar por métodos de *sputtering* o evaporación películas delgadas de FePt directamente en la fase ordenada si se las deposita sobre sustratos calentados a altas temperaturas [10].

El diagrama de fases de la Fig. 1.1 nos muestra que a altas temperaturas es termodinámicamente más estable la fase desordenada fcc. Para compuestos cercanos al equiatómico, en $\sim 1300^\circ\text{C}$ encontramos una transformación de fase cristalina, desde la estructura cúbica A1 a la tetragonal $L1_0$. Esta fase solo existe para composiciones de 35 hasta 55% atómico de Pt. Si nos apartamos de este rango, encontramos la formación de una superestructura llamada $L1_2$, estable por debajo de $T \sim 1350^\circ\text{C}$ para FePt_3 y $T \sim 850^\circ\text{C}$ para Fe_3Pt . También pueden encontrarse zonas donde coexisten dos fases: A1+ $L1_0$ para compuestos más ricos en Fe, $L1_0$ + $L1_2$ para composiciones cercanas a la equiatómica y A1+ $L1_2$ para mayor porcentaje de Pt.

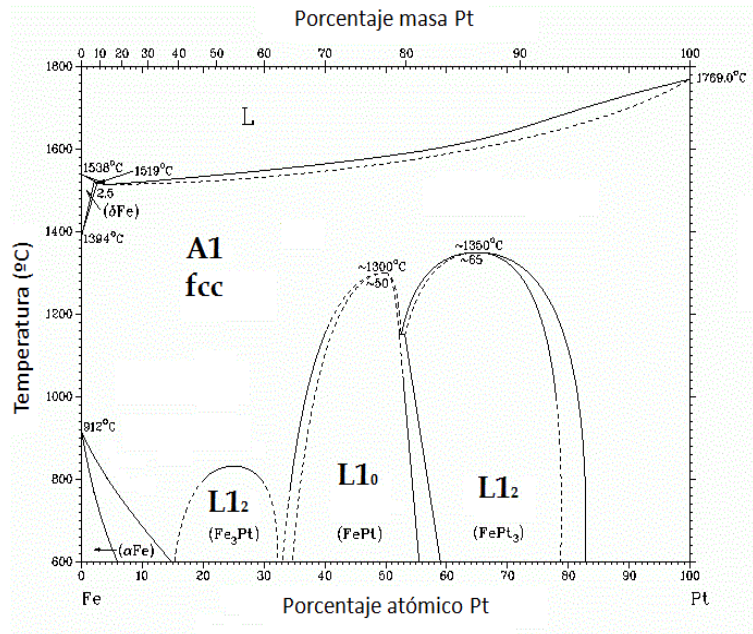


Figura 1.1: Diagrama de fases cristalin para FePt en volumen (*bulk*) en función de la composición en equilibrio termodinámico. Las líneas punteadas representan extensiones metaestables de las líneas de equilibrio estable [11].

Como los procesos de ordenamiento en el material en volumen son muy lentos, suele encontrarse en la bibliografía el diagrama de fases para temperaturas superiores a 600°C , pero se espera que para compuestos cercanos al equiatómico la fase ordenada $L1_0$ sea estable para $T < 600^{\circ}\text{C}$ [12]. La temperatura a la cual ocurren las transformaciones de fase depende tanto de la composición como de la morfología en la cual se encuentre el material. Por ejemplo, también suelen prepararse películas delgadas en la fase ordenada $L1_0$ por métodos de *sputtering*, depositando el material a temperatura ambiente o en sustratos calentados hasta $T \sim 200^{\circ}\text{C}$ para luego someterlas a un tratamiento térmico entre $400\text{-}700^{\circ}\text{C}$ y finalmente enfriarlas lentamente [13]. A su vez, el estado desordenado puede ser obtenido de una muestra ordenada si se lo calienta a una temperatura elevada para luego enfriarlo rápidamente (“*quenching*”) [14]. La diferencia principal radica en que enfriar lentamente la muestra permite el reordenamiento de los átomos en la fase $L1_0$, más estable a temperatura ambiente

En la Fig. 1.2 (a) se ilustra de forma esquemática la fase fcc A1, químicamente desordenada (el Fe y el Pt ocupan los lugares de la red de forma aleatoria) junto con las fases ordenadas $L1_0$ y $L1_2$. Notar en la Fig. 1.2 (b) que la fase $L1_0$, presente para una composición cercana a la equiatómica, tiene una estructura tetragonal. Esto es debido mayormente a que los átomos se acomodan en capas sucesivas de elementos $3d$ (Fe) y $5d$ (Pt) a lo largo de la dirección $[001]$. La fase $L1_2$ (Fig. 1.2 (c)) puede formarse para estequiometrias cercanas a 1:3 o 3:1 y presenta una estructura cúbica. Para una composición más rica en Pt, los átomos de Fe ocupan las esquinas y el Pt las caras (Fig. 1.2 (c)), mientras que lo opuesto ocurre para FePt_3 .

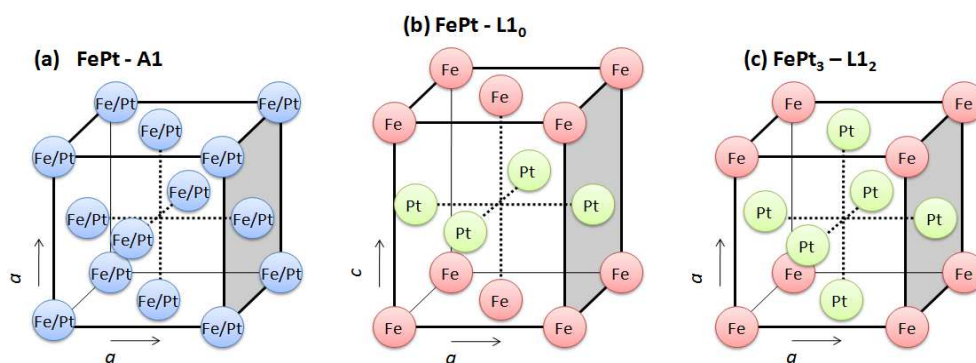


Figura 1.2: Figura esquemática para las fases (a) A1, (b) $L1_0$ y (c) $L1_2$ de la aleación FePt. Los símbolos en (a) indican una distribución al azar para los átomos de Fe y de Pt.

Desde el punto de vista del orden magnético, se observa ferromagnetismo en los compuestos de la fase $L1_0$. Los mayores valores para la temperatura de Curie son cercanos a la composición equiatómica, llegando a $\sim 750\text{ K}$ [8]. Para la fase ordenada $L1_2$ en el compuesto Fe_3Pt , encontramos una temperatura de Curie de $T_C \sim 410\text{ K}$ [15].

El FePt_3 es paramagnético a temperatura ambiente y puede exhibir dos tipos de orden antiferromagnético por debajo de 160 K [16]. Esta gran variedad de comportamientos magnéticos es altamente sensible a la composición. A modo de comparación, para los extremos del diagrama de fases tenemos $T_{C-\text{Fe}} \sim 1043$ K mientras que el Pt es paramagnético a temperatura ambiente. En la Fig. 1.3 se muestran los valores de T_C para el FePt en las fases A1 y $L1_0$, reportadas por Berry et al. [17]. En ese trabajo se mide la temperatura de Curie en películas de espesores $d = 500 - 1000$ nm, fabricadas por *sputtering* DC variando la composición en el rango 39.3- 52.5 % at. Pt. Las medidas de T_C fueron realizadas por calorimetría de barrido diferencial. Como se mencionó, el máximo en la temperatura de Curie se alcanza cerca de la composición equiatómica en la fase $L1_0$. En la fase cristalina desordenada, no hay una dependencia tan marcada con la composición, además de tener valores más bajos, donde $T_{C-\text{máx}} \sim 575$ K para una concentración de ~ 47 % at. Pt.

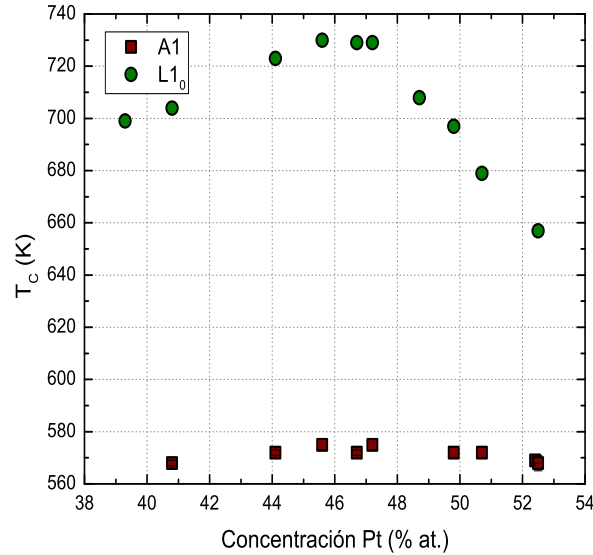


Figura 1.3: Temperaturas de Curie para FePt en las fases A1 y $L1_0$ cerca de la composición equiatómica [17].

En particular, la fase desordenada ha demostrado poseer características magnéticas notables que la hacen muy interesante para un estudio de sus propiedades físicas básicas. Por ejemplo, presenta un espesor crítico por encima del cual la estructura de dominios magnéticos cambia de planar a un arreglo periódico de bandas o tiras aproximadamente paralelas, conocidas como *stripes*, en las que existe una componente de la magnetización en la dirección normal al film [18, 19]. Este tipo de estructura también ha sido reportada en Co [20], FePd [21, 22] y Permalloy ($\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$) [23, 24].

La formación de dominios magnéticos tipo *stripe* en películas delgadas de FePt se debe a la existencia de una anisotropía magnética perpendicular al plano del film

[18, 25–27]. La competencia entre esta anisotropía y la anisotropía de forma, que tiende a orientar a la magnetización en el plano de la película, lleva a que sea energéticamente favorable la formación de una estructura de dominios en forma de tiras paralelas o *stripes*. En una imagen simplificada, esta configuración de dominios presenta una componente de la magnetización normal al plano del film que cambia periódicamente de dirección induciendo la formación de una estructura en tiras. El origen de esta componente de anisotropía fuera del plano es, en principio, debido a los efectos combinados de anisotropía magnetocristalina y energía magnetoelástica. En nuestras condiciones de crecimiento, *sputtering* a temperatura ambiente sobre sustratos de Si(100) con óxido nativo, se espera que las muestras presenten una fuerte textura en la dirección [111], la que induce una componente de anisotropía perpendicular al plano de origen magnetocristalino. Sumada a la contribución de la textura, tenemos efectos magnetostrictivos provenientes de tensiones residuales dentro del material que dependen de las condiciones de fabricación.

En las secciones siguientes de este capítulo, daremos una descripción breve de conceptos básicos del magnetismo en películas delgadas, necesarios para la comprensión de los fenómenos observados en FePt. Comenzaremos por las propiedades magnéticas fundamentales de los diferentes tipos de anisotropías y configuraciones de dominios magnéticos. Después haremos un breve repaso de algunas características del crecimiento de películas metálicas cuando utilizamos técnicas de *sputtering* para su fabricación. Esta introducción presupone conocimientos previos sobre el magnetismo y su objetivo es realizar un repaso general. Para una descripción más detallada sobre estos temas, invitamos al lector interesado a consultar la bibliografía [18, 28–33].

1.1.1. Características estructurales de películas delgadas de FePt

En esta sección discutiremos algunas de las propiedades estructurales propias de películas delgadas de FePt. En particular, resumiremos la caracterización estructural de la serie de muestras en función del espesor que utilizamos en el capítulo 3, publicada con anterioridad al inicio de este trabajo [18, 34]. Las muestras fueron fabricadas por *sputtering* DC, a temperatura ambiente y presión de argón $P_{\text{Ar}} \sim 2$ mTorr.

En la Fig. 1.4 se muestra un difractograma típico para una muestra de FePt con $d = 94$ nm [18] junto con estimaciones del parámetro de red para películas de FePt en la fase cristalina A1 tomadas de bibliografía [8, 13, 17, 18]. Todos los picos del difractograma pueden ser indexados como pertenecientes a la fase cristalina fcc. También puede verse que el pico (111) es mucho más intenso que las demás reflexiones, lo que sugiere la existencia de una textura en la dirección [111] perpendicular al plano de la película.

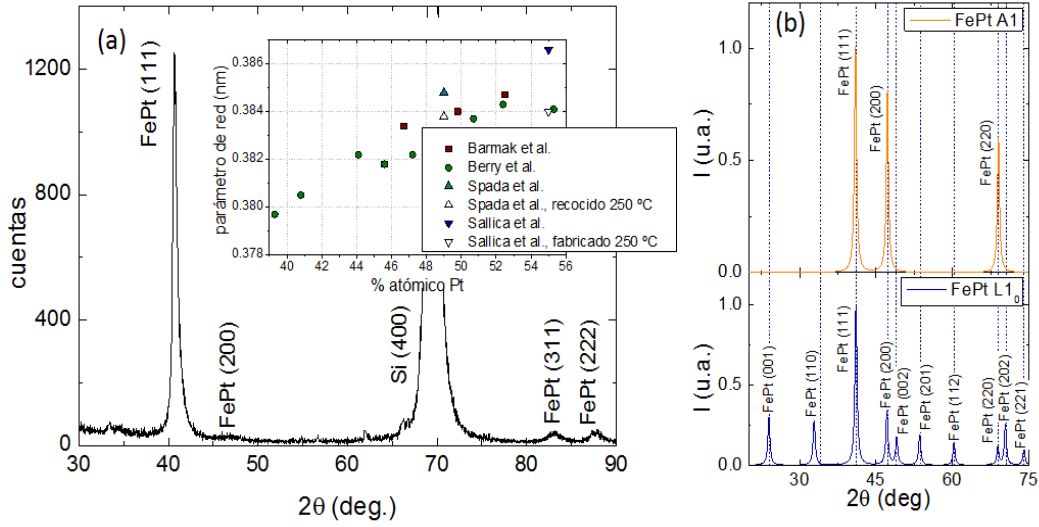


Figura 1.4: (a) Difractograma de una película de FePt de 94 nm de espesor depositada a temperatura ambiente. En el recuadro se muestra el parámetro de red obtenido de la serie de muestras de FePt estudiadas en detalle en el capítulo 3 y fabricadas por Sallica et al. [18]. A modo de comparación agregamos datos de bibliografía de parámetros de red para películas en la fase A1 en función de la concentración de Pt, correspondientes a Ref. [8] (cuadrados), Ref. [17] (círculos), Ref. [13] (triángulos) y Ref. [18] (triángulos invertidos). (b) Difractogramas calculados para el FePt en las fases A1 y L10, obtenidos de la Ref. [35].

De los diferentes picos de difracción se estimó un parámetro de red $a = 0.3866(2)$ nm para una muestra de FePt depositada a temperatura ambiente (ver recuadro de la Fig. 1.4). También se midió un difractograma de una muestra crecida sobre un sustrato de silicio calentado a $T_{\text{sustr}} \sim 250$ °C y se calculó el parámetro de red correspondiente (recuadro Fig. 1.4). Esta temperatura no es aún lo suficientemente alta como para inducir una transformación de la fase cristalina desordenada a la L10, pero sí hay una disminución de $\sim 0.7\%$ del parámetro de red respecto al fabricado a temperatura ambiente, indicando una relajación en la textura cristalina. En general observamos que cuando depositamos películas sobre sustratos en temperaturas mayores a la ambiente, la textura en la dirección [111] se reduce de forma considerable pero aún no se detectan picos de superestructura asociados a la fase tetragonal ordenada L10. Notar también la dependencia aproximadamente lineal del parámetro de red con la concentración atómica del Pt, como predice la ley de Vegard [36] para una aleación de dos constituyentes. Este comportamiento puede entenderse dado que el radio atómico r_a del Pt es mayor que el del Fe $r_{a-\text{Fe}} \sim 0.126$ nm $<$ $r_{a-\text{Pt}} \sim 0.138$ nm, por lo que la distancia interplanar tenderá a crecer con la concentración de Pt.

Del ancho de los picos de difracción puede estimarse el tamaño de grano cristalino D a través de la fórmula de Scherrer [37, 38]:

$$D = \frac{K\lambda_{\text{Cu}}}{\Delta 2\theta_{hkl} \cos \theta}, \quad (1.1)$$

que relaciona D con el ancho $\Delta 2\theta_{hkl}$ del pico correspondiente a la reflexión hkl en la posición angular 2θ . Del difractograma puede obtenerse un valor aproximado $D \sim 7.5(7)$ nm, pero este suele estar sobreestimado debido mayormente a que las cristalitas más grandes contribuyen con mayor intensidad.

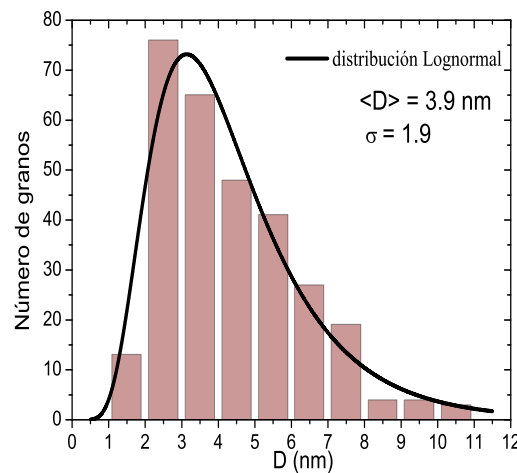


Figura 1.5: Histograma de tamaños de grano D obtenida a través del análisis de una imagen TEM. La línea continua corresponde a un ajuste con una distribución Lognormal [18, 34].

Para hacer una buena estimación del tamaño de grano se fabricó una película de 30 nm de espesor sobre una grilla estándar para medidas en un Microscopio de Transmisión de electrones (TEM). A partir de una serie de imágenes TEM, se midió el tamaño de aproximadamente 500 granos y se construyó un histograma con estos datos, el cual se presenta en la Fig. 1.5 [18, 34]. Como se muestra en la figura, las medidas fueron ajustadas por una distribución Lognormal, resultando en un tamaño de grano $\langle D \rangle = 3.9$ nm, más pequeño que lo que resulta a través del ancho de los picos de difracción y la fórmula de Scherrer.

1.2. Interacciones y anisotropías en materiales ferromagnéticos

El orden colectivo que se observa en los materiales magnéticos se debe a interacciones presentes entre los momentos magnéticos microscópicos de los átomos que constituyen el material. Estas interacciones pueden favorecer distintos tipos de

orden, ya sea alineándolos de forma paralela (ferromagnetismo-FM) o antiparalela (antiferromagnetismo-AF, ferrimagnetismo). Existe una gran variedad de interacciones, explicaremos brevemente las más usuales.

La interacción dipolar describe a la energía entre dos dipolos $\vec{\mu}_1$ y $\vec{\mu}_2$ que están separados una cierta distancia \vec{r} , siendo $\mathbf{E}_{\text{dip}} = \frac{1}{r^3} (\vec{\mu}_1 \cdot \vec{\mu}_2 - \frac{3}{r^2} (\vec{\mu}_1 \cdot \vec{r})(\vec{\mu}_2 \cdot \vec{r}))$. Esta interacción es anisotrópica, ya que depende de la posición relativa de los momentos magnéticos, pero es demasiado pequeña para causar orden magnético a las temperaturas usuales [40].

Uno de los fenómenos principales que dan lugar a la alineación entre espines es la interacción de intercambio directo, siendo su origen puramente cuántico y se debe al principio de exclusión de Pauli. En términos sencillos, la energía entre dos electrones próximos entre sí depende de la simetría de la función de onda total, es decir, de la posición relativa de sus orbitales en el espacio. Heisenberg formuló un hamiltoniano para representar esta interacción entre dos átomos vecinos con espín S_i y S_j :

$$\mathbf{H} = -2J_{ij}\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (1.2)$$

donde J_{ij} es la constante de intercambio entre los espines i y j . La interacción de intercambio descrita por la Ec. 1.2, puede dar como resultado alineación paralela o antiparalela, dependiendo del signo de J . Es claro que si $J > 0$ se favorece el acople FM, mientras que si $J < 0$ tendremos acople AF. En el estudio de materiales ferromagnéticos es habitual utilizar la constante llamada “*exchange stiffness constant*”² A , que se relaciona con J a través de la expresión [30]: $A = nJS^2/a$, donde n es el número de átomos en la celda unidad, $S = |\vec{S}_i| = |\vec{S}_j|$ y a es el parámetro de red. Existen otras clases de interacciones de intercambio directo o indirecto, y estas dependerán del tipo de material magnético.

Hasta aquí podemos ver que el hamiltoniano de Heisenberg, de la Ec. 1.2, es completamente isotrópico, por lo que sus niveles de energía no dependerán de la dirección en el espacio de la magnetización. La componente que hace falta en la descripción de estos sistemas es la presencia de anisotropías que, como su nombre lo indica, es la dependencia de las propiedades magnéticas del material con la orientación espacial de la magnetización. Los momentos magnéticos en un sistema con anisotropía magnética tenderán a alinearse en una cierta dirección, llamada eje de fácil magnetización, la cual es energéticamente favorable. Los tipos más usuales de anisotropías que podemos encontrar en sistemas magnéticos son:

- Anisotropía magnetocristalina. La orientación de la magnetización será favorecida en ciertas direcciones cristalográficas.

²En español, también se la llama constante de intercambio y se la diferencia por la notación J y A .

- Anisotropía de forma. La magnetización será afectada por la forma macroscópica del sólido.
- Anisotropía magnéticamente inducida. Pueden favorecerse direcciones de fácil magnetización aplicando un campo magnético externo durante la fabricación de la muestra.
- Anisotropía por tensiones. Está relacionada con el fenómeno de magnetostricción, que es la deformación de la muestra debido a la aplicación de un campo magnético. A su vez, las tensiones aplicadas o residuales en un sólido pueden inducir ejes de anisotropía en el material.
- Anisotropía de superficie e interfaz. Este efecto es más importante en materiales con dimensiones reducidas, como películas delgadas. Las interfaces o superficies libres suelen cambiar las propiedades magnéticas con respecto al volumen del material y dar lugar a anisotropías distintas a las del material masivo.

Algunas características de las anisotropías serán discutidas en mayor detalle a continuación.

1.2.1. Anisotropía magnetocristalina

La anisotropía magnetocristalina es un efecto intrínseco de cada material y está asociada a la estructura cristalina del mismo. El origen físico es fundamentalmente debido al acople spin-órbita, dado que la interacción del momento angular orbital y la red cristalina es grande, los orbitales se fijan fuertemente con la estructura cristalina. Experimentalmente encontramos que la magnetización no es la misma en los diferentes ejes cristalográficos. Dependiendo del sistema, podemos observar distintos tipos de simetrías, siendo los más comunes sistemas con simetría cúbica, hexagonal, tetragonal, uniaxial, etc. Una característica común de este tipo de anisotropía es que la energía depende de la dirección, pero no del sentido.

La anisotropía magnetocristalina cobra mayor importancia principalmente en muestras monocristalinas, mientras que en un material policristalino con sus granos apuntando en direcciones completamente al azar la constante efectiva de anisotropía promedia a cero. Fenomenológicamente la energía magnetocristalina por unidad de volumen se suele describir como una expansión en serie de las componentes de la magnetización, por lo que se la expresa como [28, 30]:

$$\mathbf{E}_{\text{mc}} = \mathbf{E}_0 + \sum_i b_i \alpha_{\text{cd}-i} + \sum_{i,j} b_{ij} \alpha_{\text{cd}-i} \alpha_{\text{cd}-j} + \dots, \quad (1.3)$$

donde b son los coeficientes de la expansión y α_{cd} son los cosenos directores del vector magnetización respecto de los ejes coordenados.

En el caso de un sistema con simetría cúbica (Fig. 1.6) se privilegia la orientación cristalográfica pero no el sentido, por lo que puede suponerse $\mathbf{E}_{mc}(\alpha_{cd-i}) = \mathbf{E}_{mc}(-\alpha_{cd-i})$ y $b_{ij} = 0$ para $i \neq j$, lo que nos permite simplificar la Ec. 1.3 y expresar la densidad de energía magnetocristalina de la forma [28]:

$$\mathbf{E}_{mc-\text{cúbico}} = K_0 + K_1 (\alpha_{cd-1}^2 \alpha_{cd-2}^2 + \alpha_{cd-1}^2 \alpha_{cd-3}^2 + \alpha_{cd-2}^2 \alpha_{cd-3}^2) b_i \alpha_{cd-i} + K_2 \alpha_{cd-1}^2 \alpha_{cd-2}^2 \alpha_{cd-3}^2 + \dots, \quad (1.4)$$

donde las constantes K_i dependen de las constantes b_i y se las conoce como constantes de anisotropía magnetocristalina. Si usamos la Ec. 1.4 para escribir la densidad de energía en algunas direcciones de un sistema cúbico, tenemos que $\mathbf{E}_{mc-[100]} = K_0$ y $\mathbf{E}_{mc-[111]} = K_0 + \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2$. Por ejemplo, en sistemas como Fe con estructura cristalina bcc $K_1, K_2 > 0$, lo que resulta en $\mathbf{E}_{mc-[100]} < \mathbf{E}_{mc-[111]}$. Esto implica que será energéticamente favorable que la magnetización se encuentre paralela a la dirección [100], por lo que se la llama dirección de fácil magnetización mientras que a la dirección [111] se la llama eje difícil. En algunas estructuras fcc como Ni o FePt A1 se da la situación en que $\mathbf{E}_{mc-[100]} > \mathbf{E}_{mc-[111]}$, por lo que los ejes de fácil y difícil magnetización se dan en sentido inverso. Algunos valores típicos de las constantes magnetocristalinas se muestran en la tabla en la Fig. 1.6 (b).

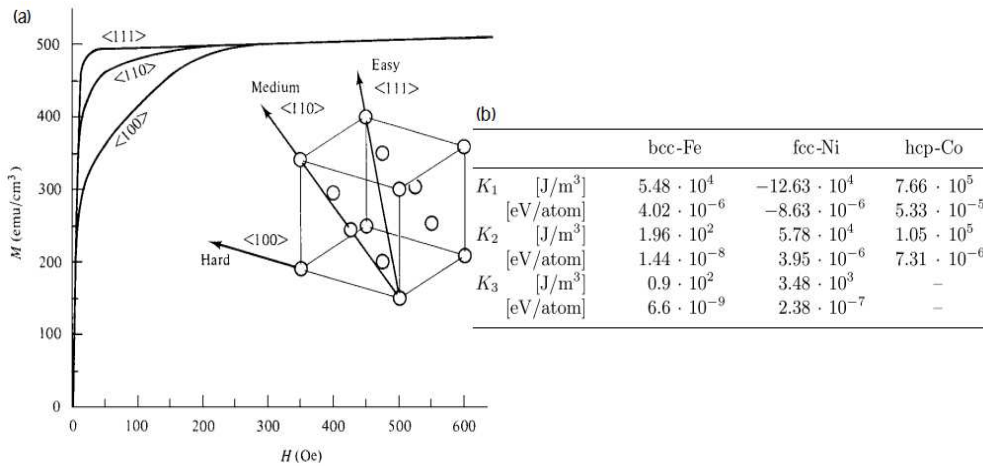


Figura 1.6: (a) Curvas de magnetización para un monocristal de Ni con estructura cristalina fcc [30]. (b) Valores típicos de las constantes de anisotropía magnetocristalina K_1 , K_2 y K_3 para el Fe, Ni y el Co. [28].

En el caso más sencillo de un material con un eje de anisotropía uniaxial, la energía de anisotropía magnetocristalina depende de las constantes K_0, K_1, \dots típicas de cada material y del ángulo θ entre la magnetización y el eje de anisotropía:

$$\mathbf{E}_{\text{mc}} = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta, \quad (1.5)$$

Dependiendo del signo de las constante de anisotropía, tendremos un sistema de eje fácil ($K_1, K_2 > 0$) o plano fácil ($K_1, K_2 < 0$). Por ejemplo, la constante de anisotropía magnetocristalina uniaxial en FePt L1₀ es particularmente alta $\sim 7 \times 10^7$ erg/cm³ [1], presentando un eje de fácil magnetización en la dirección [001]. El FePd en la fase ordenada también presenta una alta anisotropía uniaxial, del orden $\sim 2.5 \times 10^7$ erg/cm³ [41]. También se han reportado valores para las constantes de anisotropía en películas de FeCo, tanto en la fase ordenada L1₀ $K \sim 1.72 \times 10^7$ erg/cm³, como en la fase A1: $K \sim 6.25 \times 10^5$ erg/cm³ [42]. Notar que en la fase cúbica, el valor de la constante de anisotropía decrece dos órdenes de magnitud, por lo que puede esperarse que en sistemas similares (tanto de FePt como de FePd) encontremos un comportamiento semejante.

1.2.2. Anisotropía de forma

La anisotropía de forma está relacionada con el campo desmagnetizante H_d que se forma dentro de un material ferromagnético que se encuentra magnetizado y depende de la forma macroscópica de la muestra. Dentro del material, la ecuación³ que relaciona la inducción magnética B y la magnetización M tiene la forma:

$$\vec{B} = \vec{H}_d + 4\pi\vec{M}. \quad (1.6)$$

El campo desmagnetizante es proporcional a la magnetización, siendo el factor de proporcionalidad un tensor de segundo orden al que llamaremos tensor desmagnetizante \vec{N}_d . Este último depende de la geometría del sistema en estudio.

$$\vec{H}_d = -\vec{N}_d \cdot \vec{M}. \quad (1.7)$$

En general, el cálculo del factor desmagnetizante es no trivial y sólo puede resolverse analíticamente en ciertos casos de geometría sencilla, como elipsoides. Si suponemos que dentro de los mismos M es uniforme, la distribución de cargas magnéticas da lugar a que $\vec{H}_d = \text{cte}$, lo que resulta en que el tensor desmagnetizante también sea constante.

La energía por unidad de volumen (V) asociada al campo H_d se la conoce como densidad de energía magnetostática \mathbf{E}_{ms} . Utilizando la Ec. 1.7, podemos escribir:

$$\mathbf{E}_{\text{ms}} = -\frac{1}{2V} \int (\vec{H}_d \cdot \vec{M}) dv = \frac{1}{2} \vec{M} \cdot \vec{N}_d \cdot \vec{M}. \quad (1.8)$$

³En este trabajo siempre utilizaremos el sistema de unidades magnéticas cgs gaussiano, a menos que se lo aclare explícitamente.

Para cualquier elipsoide se verifica que la traza es una invariante y toma el valor $Tr(\bar{N}_d) = N_a + N_b + N_c = 4\pi$, donde N_a, N_b y N_c son los componentes de N_d en las direcciones de los ejes principales a los que llamaremos a, b y c . En el caso particular de un elipsoide achatado u “oblate”, en el cual el eje $a \ll b = c$, los factores desmagnetizantes son:

$$\begin{aligned} N_a &\sim 4\pi \\ N_b = N_c &\sim \frac{\pi^2}{b/a} \end{aligned} \quad (1.9)$$

En el caso límite de una película $b/a \rightarrow \infty$, podremos aproximar $N_b = N_c \sim 0$ y la única componente del tensor desmagnetizante distinta de cero $N_a = 4\pi$.

Para el caso del elipsoide achatado, podemos escribir la densidad de energía magnetostática como:

$$\mathbf{E}_{\text{ms}} = \frac{1}{2} N_a M^2 + \frac{1}{2} (N_c - N_a) M^2 \sin^2 \theta. \quad (1.10)$$

donde θ es el ángulo entre el vector \vec{M} y el eje a . El primer término de la Ec. 1.10 es una constante y al factor $K_{\text{ms}} = \frac{1}{2}(N_c - N_a)M^2$ se lo conoce como constante de anisotropía magnetostática. De esta expresión podemos ver que, como $N_c - N_a < 0$, el mínimo de energía se encuentra cuando $\theta = \pi/2$ y $3\pi/2$, por lo que la magnetización tenderá a encontrarse en el plano de la película.

1.2.3. Anisotropía por tensiones

Hasta ahora hemos supuesto que tratamos con un sólido cuyo parámetro de red es constante, pero cuando sometemos a un material magnético a un campo externo, este tiende a cambiar sus dimensiones en la dirección de H .

Para distinguir entre la deformación por tensiones (a la que denotaremos ε) y la debida a magnetostricción, llamamos al cambio en longitud inducido magnéticamente sobre la longitud inicial como $\lambda = \frac{\Delta l}{l}$. Este cambio en la longitud se asocia a la rotación de la magnetización dentro de los dominios a medida que nos aproximamos a la saturación. Al valor de la deformación medido cuando alcanzamos la magnetización de saturación se lo llama coeficiente de magnetostricción en saturación λ_{sat} , o simplemente⁴ λ . En general, un material tendrá diferentes λ_{ijk} según la dirección cristalográfica (ijk) y solo dos son independientes entre sí. En el caso de un cristal cúbico $\lambda_{110} = \frac{3}{4}\lambda_{111} + \frac{1}{4}\lambda_{100}$.

De forma recíproca, si aplicamos una tensión en una muestra ferromagnética, podemos inducir un eje de fácil o difícil magnetización. Para un material con

⁴En general, se usa simplemente el término “magnetostricción” para referirse al coeficiente λ en saturación.

estructura cúbica y coeficiente de magnetostricción isotrópico, la densidad de energía elástica está dada por [30]:

$$\mathbf{E}_{\text{me}} = -\frac{3}{2}\lambda_{\text{sat}}\sigma \sin^2 \delta. \quad (1.11)$$

donde δ es el ángulo entre la magnetización M y el eje donde se aplica la tensión $\sigma = E\varepsilon$, siendo E el módulo de Young, que consideraremos isotrópico. Si comparamos esta expresión con la usual para las energías de anisotropías uniaxiales de la forma $\mathbf{E}_a = K_a \sin^2 \delta$, podemos definir a la constante de anisotropía magnetoelástica como:

$$K_{\text{me}} = \frac{3}{2}\lambda_{\text{sat}}\sigma. \quad (1.12)$$

En general, los valores de magnetostricción toman valores de $\lambda_{\text{sat}} = \lambda \sim 10^{-5}$. Por ejemplo, para el Fe encontramos $\lambda_{[100]} = 2.4 \times 10^{-5}$ y $\lambda_{[111]} = -2.3 \times 10^{-5}$, mientras que para el Ni, $\lambda_{[100]} = -6.6 \times 10^{-5}$ y $\lambda_{[111]} = -2.9 \times 10^{-5}$ [28]. Los valores reportados para FePt y FePd en la fase cristalina desordenada A1 se encuentran en el orden $\lambda \sim 3.4 \times 10^{-5}$ [13] y $\lambda \sim 6.5 \times 10^{-5}$ [41], respectivamente.

1.2.4. Mezcla de anisotropías en una película delgada

En esta sección discutiremos el comportamiento de la magnetización en el caso particular de películas delgadas con una componente de anisotropía perpendicular al plano de la muestra. Esta componente puede ser resultado de diferentes factores, como un eje fácil magnetocristalino o inducida por tensiones. En películas muy delgadas o multicapas, los efectos de la anisotropía de interfaz también pueden producir una componente de la anisotropía perpendicular al plano.

Por un lado, debido a la presencia de un término de anisotropía perpendicular, la magnetización tiende a salir del plano, pero a su vez la acumulación de cargas en la superficie hace que aumente el campo disperso, aumentando a su vez la energía magnetoestática y favoreciendo por lo tanto que la magnetización se mantenga en el plano de la película que reduce \mathbf{E}_{ms} . Si definimos a la constante de anisotropía efectiva $K_{\text{eff}} = 2\pi M_s^2 - K_{\perp}$, θ como el ángulo entre la normal al plano \hat{n} y la magnetización M_s y α como el ángulo entre \hat{n} y el campo externo H , podemos escribir:

$$\mathbf{E}_m = -HM \cos(\theta - \alpha) + K_{\text{eff}} \cos^2 \theta. \quad (1.13)$$

El primer término es el correspondiente a la energía de Zeeman y toma en cuenta la interacción de la magnetización con el campo aplicado. En este caso K_{\perp} contiene todas las contribuciones de anisotropía que no sean por la forma. Notar que el signo de K_{eff} determinará si se corresponde a un plano fácil ($K_{\text{eff}} > 0$) o a un eje fácil ($K_{\text{eff}} < 0$) en la dirección de \hat{n} . Es decir, para $H = 0$, si $K_{\text{eff}} < 0$ la energía se minimiza para $\theta = 0$

(eje fácil perpendicular al plano) y si $K_{\text{eff}} > 0$ la energía se minimiza para $\theta = \pi/2$ (plano fácil).

La razón entre la energía de anisotropía perpendicular y el término de energía desmagnetizante define el factor de calidad Q :

$$Q = \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2} \quad (1.14)$$

De acuerdo a lo discutido previamente se espera que para $Q < 1$ la magnetización de la película delgada esté totalmente contenida en el plano y para $Q > 1$ se oriente en la dirección perpendicular. A continuación veremos que bajo ciertas condiciones es posible tener una componente de la magnetización perpendicular al plano de la película aún para $Q < 1$.

En películas delgadas de ciertas aleaciones ferromagnéticas fabricadas a temperatura ambiente, es posible encontrar una competencia entre la anisotropía efectiva perpendicular K_{\perp} , que tiende a sacar a la magnetización fuera del plano, y la anisotropía de forma que favorece una magnetización básicamente planar. Estos dos factores no solo determinan la orientación de equilibrio del vector magnetización, sino también el tipo de estructura de dominios magnéticos. Dependiendo del valor de la razón entre la anisotropía perpendicular y la energía desmagnetizante (factor de calidad $Q = \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2}$) y el espesor d de los films, generalmente se encuentra uno de los siguientes regímenes:

1. Una configuración de dominios magnéticos consistente en dominios con la magnetización en el plano.
2. Una configuración de dominios magnéticos en forma de *stripes*, donde una componente de la magnetización se encuentra fuera del plano, alternando el sentido de un *stripe* al siguiente.
3. Para $Q > 1$, una estructura en la cual la magnetización en cada dominio es completamente perpendicular a la superficie de la película.

Los dominios magnéticos tipo *stripes* pueden ser solamente encontrados en películas en las cuales exista una componente de anisotropía magnética perpendicular, es decir: cuando $Q > 0$, y han sido reportados en una gran variedad de materiales ferromagnéticos como por ejemplo Co [20], FePd [21, 22], Permalloy (Py: Fe₂₀Ni₈₀) [23, 24] o FePt [18, 43]. En la sección 1.3.2 haremos una descripción más detallada de este tipo de configuración magnética.

Para $Q < 1$ la transición de dominios planares a *stripes* ocurre por encima de un espesor crítico d_{cr} que depende de propiedades del material tales como la anisotropía, la magnetización de saturación y la constante de intercambio. Existen diversos

modelos del comportamiento de d_{cr} [31, 44, 45] que en general, para materiales con una alta magnetización, alta constante de intercambio o relativamente pequeña anisotropía, predicen valores más grandes del espesor crítico observado experimentalmente. Mediciones en materiales que exhiben *stripes* reportan valores de d_{cr} en el rango de 20-30 nm para el Co [20], FePd parcialmente ordenado [33] o FePt en la fase desordenada [18] y valores significativamente mayores (~ 200 nm) en películas con baja anisotropía, como el Py.

1.3. Dominios magnéticos

Hasta ahora hemos discutido acerca de los dos mecanismos principales para la formación de dominios magnéticos presentes en un material ferromagnético: la interacción de intercambio directo y la anisotropía. La imagen que con solo estos elementos podemos hacernos acerca de la estructura magnética es de un solo bloque de momentos magnéticos alineados que, en ausencia de un campo magnético externo, apuntan en la dirección de un eje fácil dado por la resultante de las anisotropías presentes. Otra faceta a tener en cuenta en esta imagen es la energía magnetostática, \mathbf{E}_{ms} , presentada en la Ec. 1.8.

Si nuestro material sólo consta de un bloque de momentos magnéticos apuntando en la misma dirección, el campo disperso será mucho mayor que si dividimos nuestro material en pequeñas regiones apuntando en sentidos opuestos. De la competencia en tratar de minimizar ambas energías, \mathbf{E}_{exch} y \mathbf{E}_{ms} , la muestra se dividirá en regiones dentro de las cuales los momentos estarán alineados, alcanzando localmente valores de magnetización de saturación. Estas regiones se las conoce como dominios magnéticos y la zona de transición entre dos de estas regiones se la conoce como pared de dominio. El ancho de dichas paredes está dado por la competencia entre la interacción de intercambio y la anisotropía. Por un lado, el intercambio favorece que los momentos estén alineados, resultando en paredes extensas. A su vez, como la anisotropía no depende del sentido sino sólo de la dirección, la energía es mínima si la pared consiste simplemente en un salto de 180° de un spin al siguiente. La competencia entre ambos factores determinará el ancho de equilibrio de la pared.

1.3.1. Paredes de dominio

Dada la gran cantidad de formas de clasificar las paredes de dominios y la incontable cantidad de modelos que se han desarrollado para describirlos, en esta sección se hace simplemente un resumen de los tipos de paredes más usuales y sus principales características. El lector interesado en profundizar sobre este tema puede encontrar una descripción más detallada en libros sobre magnetismo [28, 31, 33].

Una forma de clasificación puede ser diferenciar entre el ángulo de la magnetización entre dominios vecinos. Los tipos más usuales son:

- Paredes de 180° . Estas son las más sencillas, dividen dos regiones con magnetizaciones opuestas. Pueden observarse en materiales con anisotropía uniaxial, como por ejemplo el Co que sólo exhibe paredes de este tipo, y suele ser el más común en películas delgadas.

A su vez, las paredes de 180° pueden clasificarse en al menos dos tipos, dependiendo de cómo rota la magnetización con respecto a la normal, \hat{n} , del plano donde está contenida la pared. Si la magnetización rota perpendicular (paralela) a \hat{n} , se la llama pared de Bloch (Néel). En el caso de una película delgada, la formación de un tipo u otro de pared dependerá del espesor de la película.

- Paredes de dominio de ángulos menores de 180° . Estos tipos de paredes se pueden encontrar en materiales con anisotropía multiaxial o cuando aplicamos un campo magnético perpendicular al eje fácil de una muestra con anisotropía uniaxial. El ejemplo más común es el de una pared de 90° , la cual separa dominios con magnetizaciones perpendiculares entre sí.

1.3.2. Dominios magnéticos tipo “*stripes*”

La nucleación de dominios magnéticos no es, en general, fácilmente modelable debido a que es un proceso mayormente dominado por defectos e inhomogeneidades presentes en la muestra. Sin embargo, bajo ciertas condiciones favorables podemos recurrir a las ecuaciones de micromagnetismo para resolver de forma analítica la evolución de los dominios. La teoría comienza con las ecuaciones micromagnéticas, que se obtienen de minimizar la energía libre total, respecto del vector magnetización. La ecuación de la energía libre incluye términos que toman en cuenta el intercambio, la contribución de las diferentes anisotropías, la interacción con el campo externo y el campo disperso, las tensiones y la magnetostricción. El objetivo es linealizar estas ecuaciones.

En el año 1961 Muller [32] partió de las ecuaciones micromagnéticas para calcular analíticamente la distribución de la magnetización en una película ferromagnética con un eje fácil en la dirección normal y un campo magnético externo aplicado en la dirección del plano. El resultado son desviaciones senoidales del vector magnetización, con forma de tiras (“*stripes*”) alineadas siguiendo la dirección del campo aplicado. Dos años más tarde de la predicción hecha por Muller, Spain [46] observa experimentalmente este tipo de estructuras en $\text{Ni}_{80,5}\text{Fe}_{17,5}\text{Co}_2$ y de forma

independiente, Saito y colaboradores [47] observan dominios en tiras en películas de la aleación $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, también conocida como Permalloy (Py).

La solución general del problema depende de varios parámetros: el espesor de la película, el campo externo, la constante de intercambio A y el factor de calidad $Q = \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2}$, (Ec. 1.14). En una película delgada la magnetización usualmente se encuentra en el plano, pero si existe una componente perpendicular de la anisotropía, Q nos da una idea del comportamiento magnético del material: si $Q > 1$, la magnetización en cada dominio es perpendicular a la superficie del film (“*strong stripe domains*”) y si $Q < 1$, la magnetización tiende a encontrarse esencialmente en el plano, con una componente alternante perpendicular (“*weak stripe domains*”). Además de encontrarse en películas de FePt, este tipo de estructura también ha sido reportado en Co [20], FePd [21] y Permalloy [24], entre otros sistemas.

En materiales con una anisotropía perpendicular uniaxial débil observamos la formación de *stripes* por encima de un cierto espesor crítico d_{cr} , mientras que por debajo del mismo la magnetización se encuentra en el plano. A medida que el espesor aumenta, la magnetización tiende a estar cada vez más cerca de la perpendicular al film, mientras que el período de los *stripes* también aumenta [31, 33, 44].

En el trabajo de la Ref. [44], Murayama realizó cálculos numéricos con el fin de estimar el ancho de los dominios en *stripes* en una película delgada ferromagnética con una componente de anisotropía perpendicular. Además, compara su modelo (llamado modelo III en su trabajo) con otros propuestos anteriormente, a los que llama Modelo I y II. A lo largo de esta tesis, utilizaremos estos modelos, especialmente el Modelo I (al que llamaremos unidimensional en los capítulos experimentales) y el Modelo III, al que nos referiremos simplemente como modelo de Murayama. A continuación describiremos brevemente las características principales de cada modelo.

El llamado Modelo I se basa principalmente en el trabajo presentado por Kaczér et al. [39], en el cual se considera que la magnetización simplemente varía a lo largo de la coordenada x , que es la que se extiende perpendicular a la dirección de los *stripes*. (Fig. 1.7). Con esta configuración para la magnetización se resuelve la ecuación de Euler, que consiste en términos que toman en cuenta las energías de anisotropía e intercambio [39].

Más adelante, N. Saito [48] generalizó el modelo presentado por Kaczér, dejando que la magnetización varíe no solo en x sino en la coordenada z (Fig. 1.7). Esta modificación permite una variación gradual que dispersa la acumulación de cargas en la superficie y toma en consideración la existencia de dominios de clausura que disminuyen la energía magnetostática. En sus cálculos hizo la suposición que no existen cargas magnéticas más que en la superficie y describe la configuración de dominios con una función senoidal, lo que mejoró el acuerdo con los resultados experimentales. Este es llamado Modelo II por Murayama.

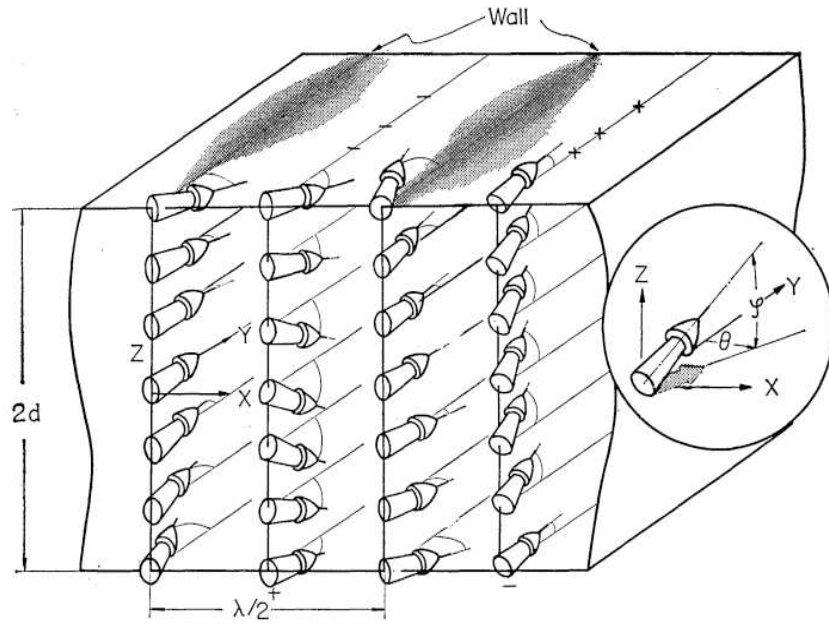


Figura 1.7: Sección transversal de una película de espesor $2d$ con estructura de dominios en *stripes* de semiperíodo $\lambda/2$, magnetizada en la dirección y . Imagen tomada del trabajo original de Murayama [44].

El Modelo III, desarrollado matemáticamente en el trabajo [44], es el que menos restricciones impone a la magnetización, ya que también permite un movimiento periódico en el plano paralelo al de la película. Se resuelve la magnetización a través de la ecuación de Euler, de la misma forma que en el Modelo I de Kaczér et al [39].

En términos de los ángulos del esquema de la Fig. 1.7:

- $\varphi_m = \varphi_m(x), \theta_m = 0$ (Modelo I).
- $\varphi_m = \varphi_m(x, z), \theta_m = 0$ (Modelo II).
- $\varphi_m = \varphi_m(x, z), \theta_m = \theta_m(x, z)$ (Modelo III).

En su trabajo, Murayama se centra en la condición crítica, llegando a una expresión para el semiperíodo de los *stripes* en función del espesor, válida para Q pequeños y cercanos a d_{cr} [44]:

$$\frac{\lambda_s}{2} = \left[\frac{(2\pi)^2 d^2 A}{2\pi M_s^2} \left(1 + \frac{1}{Q} \right) \right]^{1/4}, \quad (1.15)$$

siendo A la constante de intercambio y M_s la magnetización de saturación. La Ec. 1.15, junto con expresiones similares deducidas a partir de los supuestos en los Modelos I y II, son comparados con resultados experimentales publicados por Saito et al. [47] para películas de $\text{Fe}_{10}\text{Ni}_{90}$ con $Q \sim 0.17$, obteniendo un relativamente buen acuerdo con el

Modelo III. Para las expresiones deducidas a través de los modelos I y II, se predicen valores menores que los resultados experimentales.

A pesar de predecir relativamente bien resultados experimentales, el modelo de Murayama tiene la desventaja de presentar una compleja formulación matemática. Algunos años más tarde, Sukstanskii y Primak [45] retoman el modelo unidimensional para obtener expresiones que permiten deducir el espesor crítico en función del factor de calidad Q . En su trabajo, Sukstanskii y Primak centran su atención en películas ultra-delgadas ($d < 1$ nm) en las que suponen que la distribución de la magnetización es homogénea con respecto al eje z y el ancho de las paredes de dominios magnéticos δ es infinitesimalmente pequeño. Partiendo de la energía característica de un ferromagneto uniaxial, usan una función de prueba para la magnetización con una dependencia senoidal de la coordenada x . Sustituyendo esta función en la ecuación de la energía se llega a un conjunto de ecuaciones paramétricas que relacionan d_{cr} y Q a través del parámetro x [33, 45] :

$$\begin{aligned} Q &= \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2} = \frac{1}{2\pi} [3x - (\pi + 3x) e^{-\pi/x}] \\ d_{\text{cr}} &= l_e \frac{\sqrt{2}\pi^{3/2}}{x} [x - (\pi + x) e^{-\pi/x}]^{-1/2} . \end{aligned} \quad (1.16)$$

En la expresión anterior se define a $l_e = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{A}{2\pi M_s^2}}$ como la longitud de intercambio, donde A es la constante de intercambio, también llamada “*exchange stiffness constant*” que se relaciona con la constante de intercambio J de los modelos tipo Heisenberg a través de la relación [30]: $A = nJS^2/a$, donde n es el número de átomos en la celda unidad y a es el parámetro de red.

Las Ecs. 1.16 también son válidas para películas con $d \geq 1$ nm. En el caso de películas ultra-delgadas ($d < 1$ nm) puede suponerse que los dominios son mucho mayores que el espesor del film y deducir una expresión simplificada para el espesor crítico en función del factor de calidad, encontrando que $d_{\text{cr}} \propto [4\pi - Q]^{1/2}$. Notar que las ecuaciones presentadas en esta sección no conservan la notación empleada en los trabajos originales, sino que hemos adaptado la los símbolos para adecuarlos a los usados en esta tesis.

Este modelo unidimensional (Ec. 1.16) fue probado experimentalmente por Gehanno et. al [33] en una muestra en forma de cuña, con $0 < d \leq 45$ nm, fabricada parcialmente en la fase L1₀ utilizando la técnica “*Molecular beam epitaxy*” en ultra alto vacío. Con un factor de calidad de la muestra $Q \sim 0.4$, se encontró un muy buen acuerdo entre el modelo propuesto por Sukstanskii y los datos experimentales. Los semiperíodos fueron ajustados simplemente empleando una dependencia con el espesor del tipo \sqrt{d} , acorde con lo esperado según la Ec. 1.15, también mostrando un excelente acuerdo.

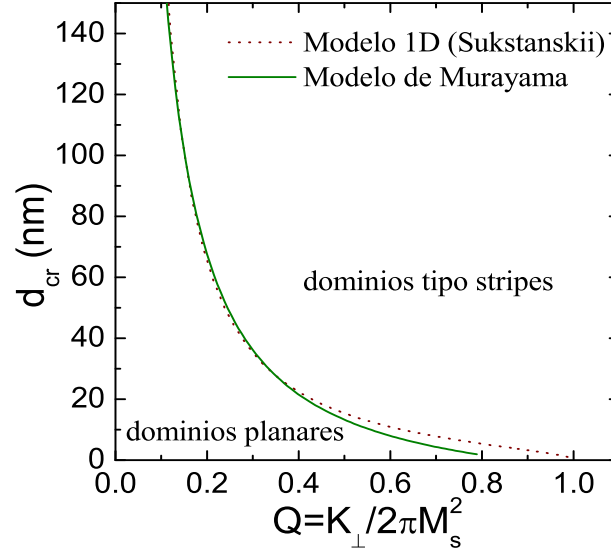


Figura 1.8: Espesor crítico en función del factor de calidad Q . En el gráfico se comparan las curvas propuestas por el modelo unidimensional Ec. 1.16 [45] y de Murayama [44]. Los valores de magnetización $M_s = 866 \text{ emu/cm}^2$ y de longitud de intercambio $l_e \sim 3 \text{ nm}$ corresponden a películas delgadas de FePt [19].

1.4. Crecimiento de películas delgadas

Las propiedades mecánicas y magnéticas de una película delgada policristalina dependen fuertemente de las características de los granos que la componen, ya sea la geometría, el tamaño promedio, la distribución de tamaños o la orientación cristalográfica preferencial de los mismos. Ya que uno de los objetivos de esta tesis es explorar el efecto de variar las condiciones de crecimiento en las propiedades magnéticas de las muestras, describiremos brevemente conceptos fundamentales de la dinámica de crecimiento de granos en películas delgadas metálicas.

1.4.1. Crecimiento de granos y textura

Consideremos un modelo sencillo para revisar cómo el crecimiento de granos acompaña al desarrollo de una textura en películas policristalinas. Supondremos que los granos en el film crecen siguiendo una forma elipsoidal con sección circular sobre el sustrato y donde r_p es el radio de un grano en la dirección perpendicular al plano. El valor de equilibrio de r_p para una película de espesor d [49] está dado por:

$$r_p = \frac{d\gamma_{bg}}{\Delta\gamma_s + \Delta\gamma_i}, \quad (1.17)$$

donde $\Delta\gamma_s$ y $\Delta\gamma_i$ representan la densidad de energía por unidad de área asociada a la superficie libre y a la interfaz sustrato/película, respectivamente, y γ_{bg} es la densidad de energía entre los bordes de grano.

Cuando las paredes entre granos se mueven, lo hacen a una velocidad tal que minimiza su área superficial (y por lo tanto r_p). Bajo estas condiciones, los bordes de grano se moverán a velocidad constante de manera tal que los granos más grandes seguirán creciendo a expensas de los más pequeños [49]. A este régimen se lo conoce como “crecimiento normal” y da como resultado un aumento en el tamaño de grano promedio.

Por otro lado, este tipo de crecimiento puede no ser el más conveniente en el caso de películas delgadas dado que las energías de interfaz y superficie adquieren mayor importancia. Ahora el crecimiento de algunos granos con una orientación cristalográfica dada puede ser favorable debido a que minimizan $\Delta\gamma_s$ y $\Delta\gamma_i$, sin importar el tamaño del mismo. En este régimen, llamado “crecimiento anormal”, se favorece el desarrollo de una textura, pero no necesariamente aumentará el tamaño promedio de los granos. Por ejemplo, para metales fcc sobre sustratos amorfos se espera que los granos orientados en la dirección (111) minimicen la energía de interfaz y por lo tanto el crecimiento de granos con esta orientación se verá favorecido.

1.4.2. Origen de las tensiones

Como hemos discutido anteriormente, cuando fabricamos películas delgadas el crecimiento de los granos tiende a una evolución en la distribución de tamaños y orientación cristalina de los granos. El exceso de energía asociado al incremento de bordes de grano se redistribuye durante el proceso de crecimiento produciendo una tensión en la película. A su vez, las tensiones pueden inhibir o promover el crecimiento de una cierta textura.

Debido a que generalmente están adheridas a un sustrato más grueso, las películas delgadas suelen estar sometidas a tensiones y deformaciones biaxiales. En este caso la tensión y energía de deformación a la que está sometido cada grano depende de su orientación cristalina y de la anisotropía magnetoelástica. Esta última puede ser cuantificada por el factor de anisotropía de Zener: $A_Z = \frac{2C_{44}}{C_{11}-C_{12}}$, donde C_{ij} son las constantes elásticas del tensor de módulo elástico. Podemos escribir el módulo de Young en cualquier dirección cristalográfica $\mathbf{E}_{[hkl]}$, utilizando las relaciones entre las constantes elásticas C_{ij} o de compliancia S_{ij} : [50]

$$\frac{1}{\mathbf{E}_{[hkl]}} = S_{11} - 2(S_{11} - S_{12} - 1/2S_{44})(\alpha_{cd}^2\beta_{cd}^2 + \beta_{cd}^2\gamma_{cd}^2 + \alpha_{cd}^2\gamma_{cd}^2), \quad (1.18)$$

donde α_{cd} , β_{cd} y γ_{cd} son los cosenos directores entre la dirección $[hkl]$ y los ejes $[100]$, $[010]$ y $[001]$, respectivamente.

Por ejemplo, para la mayoría de los metales con estructura fcc, $A_Z > 1$. Esto

quiere decir que el prefactor $2(S_{11} - S_{12} - 1/2S_{44})$ de la Ec. 1.18 es positivo, lo que a su vez implica que el módulo elástico, y por lo tanto la energía magnetoelástica, será máximo en la dirección (111) y mínimo en (100), por lo que esta última textura se verá favorecida. Sin embargo, en películas metálicas fcc depositadas por *sputtering* sobre sustratos amorfos, la orientación [111] es la que minimiza la energía de superficie en interfaz. [50]

En general, la tensión total resultante es la suma de diferentes contribuciones:

- Expansión térmica. Aparece en el caso en que se realice un tratamiento térmico en la muestra y es debida a la diferencia entre los coeficientes de expansión térmica entre el sustrato y la muestra. También cuando se deposita a T diferentes de temperatura ambiente T_{amb} .
- Extrínseca. Debida a tensiones aplicadas de forma externa o deformación plástica.
- Intrínseca. Este es el caso de películas crecidas a temperatura ambiente. Los procesos elementales que pueden causar tensiones pueden ser incorporación de átomos de gases residuales, diferencia entre los parámetros de red del sustrato y la película o dislocaciones y fallas en la red cristalina, entre otras. [51]

Las películas crecidas por *sputtering* a temperatura ambiente y sin ningún tratamiento térmico posterior, desarrollan tensiones intrínsecas altas. En algunos materiales (un caso típico es el Cr [50]) los iones producto del proceso de *sputtering* tienen poca movilidad una vez que llegan al sustrato. En estos casos, la presión de Ar dentro de la cámara es la que determinará mayormente el tipo de tensiones. Para P_{Ar} bajas, usualmente encontraremos grandes tensiones de compresión en el plano del film y, a su vez, P_{Ar} altas resultan en tensiones de expansión. En la mayoría de este tipo de materiales, se encuentra la transición en el signo de las tensiones entre $P_{\text{Ar}} = 1 - 10$ mTorr, siendo el cambio bastante abrupto y llegando a valores de tensión de ± 1 GPa, ya sean compresivas o expansivas.

Visto desde el plasma de gas, presiones bajas significan pocas colisiones, de modo que los átomos llegan con mayor energía cinética a la superficie, comprimiendo la película. Las presiones de gas altas, sin embargo, incrementan la cantidad de colisiones de dispersión (menor camino libre medio) de manera que se obstaculiza el bombardeo de los átomos. De esta forma, llegan a la superficie de la muestra con menor energía y surgen tensiones de expansión. Desde el punto de vista de la estructura, elevadas presiones de gas son propicias para el desarrollo de granos columnares con huecos intercristalinos. Esta estructura presenta una alta resistencia y tensiones de expansión [52]. La presencia de gases residuales, como vapor de agua u oxígeno, tienen el efecto de producir tensiones de compresión y es dependiente de la calidad del vacío en la cámara de *sputtering*.

La posibilidad de controlar las tensiones residuales con la P_{Ar} en la cámara de *sputtering* será utilizada en los capítulos siguientes para estudiar de qué forma los efectos magnetoelásticos modifican la estructura de dominios magnéticos en las películas de FePt.

Capítulo 2

Técnicas de fabricación y de caracterización estructural y magnética

El trabajo que hemos realizado a lo largo de esta tesis es básicamente experimental. Es por eso que el proceso de fabricación es esencial y es de la mayor importancia realizar una cuidadosa caracterización tanto estructural como de la respuesta magnética de las muestras. A continuación realizamos una descripción de las técnicas empleadas para la fabricación, caracterización y medición de las propiedades magnéticas.

2.1. Fabricación

Existe una gran variedad de técnicas de fabricación de películas delgadas metálicas. Uno de los métodos más utilizados aprovecha el llamado proceso de *sputtering* que, en términos generales, consiste en el transporte de átomos desde un blanco hasta el sustrato sobre el cual se quiere depositar la película. Esta técnica se basa en la transferencia de momento por iones energéticos, usualmente de Ar^+ .

La técnica más simple es la conocida como *sputtering* DC, en la cual se establece una diferencia de potencial, generalmente del orden de algunos cientos de volts, entre un blanco metálico (cátodo) y el sustrato (ánodo). Esta diferencia de potencial acelera los iones de gas de Ar^+ hacia el blanco metálico estableciendo una corriente entre el cátodo y el ánodo. De esta forma se genera un plasma, que resulta en iones de argón golpeando el blanco con energía suficiente para arrancar y transferir parte de su energía a los átomos de la superficie, produciendo una colisión en cascada, permitiendo que estos abandonen el blanco y se adhieran al sustrato. La presión en la cámara debe ser ajustada para que los iones dispersados sufran algunas colisiones antes de llegar al sustrato. Si no lo hacen, es posible que lleguen con energía suficiente para

arrancar átomos ya depositados en la película (proceso al que suele llamarse como *resputtering*). Por otro lado, si sufren demasiadas colisiones tienen poca movilidad al llegar a la superficie de la película en crecimiento, pudiendo resultar en baja adhesión con el sustrato y una superficie rugosa [29].

Como se discutirá a lo largo de los capítulos siguientes, la presión de argón dentro de la cámara también puede variarse con el fin de controlar las tensiones residuales en las muestras. En la sección 1.4.2 de la Introducción mencionamos que la incorporación de átomos de gas dentro de la película influye de forma directa en las tensiones dentro de la película. Si solo tomamos en cuenta la contribución de los átomos de gas, bajas presiones significan menos colisiones, por lo que los átomos de gas pueden penetrar directamente en la película, comprimiéndola. Por otro lado, altas presiones de gas dentro de la cámara significa una gran cantidad de colisiones, obstaculizando el bombardeo de átomos en la película en crecimiento y favoreciendo tensiones más bien de extensión [52].

Una forma de aumentar la eficiencia de depósito es a través de lo que se conoce como magnetrón *sputtering* DC (ver esquema de la Fig. 2.1). En este caso el equipo cuenta con imanes permanentes que generan campos magnéticos perpendiculares obligando a los electrones a describir trayectorias helicoidales, aumentando a su vez las probabilidades de colisionar con los átomos de gas consiguiendo así ionizar más átomos de argón en las cercanías del blanco.

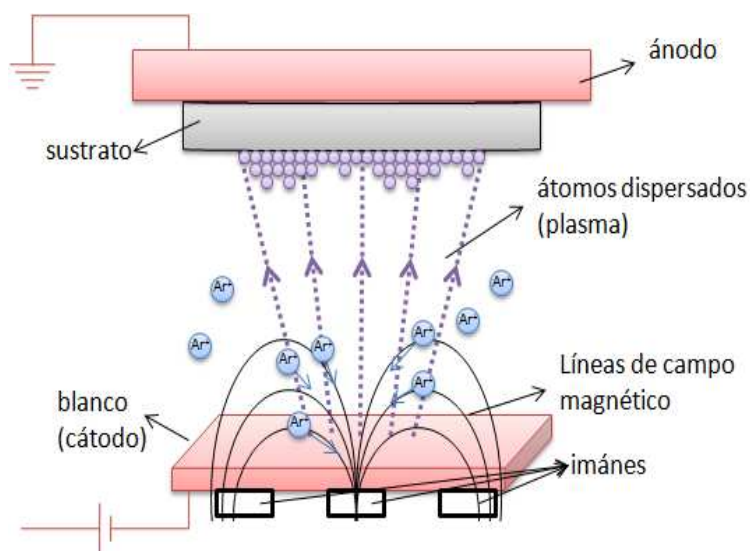


Figura 2.1: Esquema de funcionamiento de un magnetrón *sputtering* DC. La incorporación de un campo magnético a través de los imanes aumenta la velocidad de depósito.

Cuando se quiere crecer un material no conductor, no es posible establecer una corriente entre el blanco y el sustrato. En este caso suele utilizarse el método de *sputtering* RF (por sus siglas en inglés, radio-frequency) que consiste en aplicar una

tensión alterna con una frecuencia usualmente del orden de los 13.56 MHz [29].

El *sputtering* es una técnica utilizada ampliamente para crecer películas delgadas. Una de sus ventajas es que es posible conseguir una buena reproductibilidad si se cuenta con un buen control de los parámetros como la presión de gas dentro de la cámara y la potencia. Además, en el caso de aleaciones metálicas la composición del blanco suele coincidir con la de las muestras.

Todas las muestras estudiadas en esta tesis fueron fabricadas en un equipo de *sputtering* DC/RF, ubicado en el Laboratorio de Nanociencia y Nanotecnología en el Centro Atómico Bariloche.

2.2. Técnicas de caracterización estructural y de composición química

En algunos capítulos de esta tesis nos concentramos en estudiar el cambio que ocurre en las propiedades magnéticas en diferentes series de muestras originada en la variación controlada de ciertos parámetros en el proceso de fabricación que, a su vez, impactan de forma directa en las propiedades estructurales. Es por esta razón que realizar como primer paso una caracterización estructural exhaustiva es de suma importancia para correlacionar correctamente las implicaciones que tiene la morfología en el comportamiento magnético. En general, elegimos utilizar experimentos de difracción de rayos-X para la caracterización estructural y técnicas de espectroscopía para conocer la composición y entorno químico tanto de las películas como del blanco de FePt.

2.2.1. Difracción de rayos-X

Una de las técnicas más extendidas en la caracterización estructural es la difracción de rayos X. Esto se debe principalmente a la sencillez de la medida, que requiere poca preparación de las muestras y sin necesidad de vacío. Es una técnica altamente versátil, que permite obtener una gran cantidad de información de una amplia variedad de muestras, ya sea en polvo, películas, monocristales, cerámicos, etc.

Los principios básicos de generación de los rayos X y su interacción con la materia han sido descritos ampliamente en la bibliografía [37, 53], por lo que nos limitaremos a describir las características fundamentales de un patrón de difracción y algunas de las aplicaciones más importantes.

Un difractograma de rayos-X recoge datos de intensidad (o número de cuentas) en función del ángulo de difracción 2θ . Los datos más importantes que se extraen de un difractograma convencional son los siguientes:

- La posición de los picos de difracción, determinada por la ley de Bragg $\lambda = 2d_{hkl}\sin\theta$, donde λ es la longitud de onda de los rayos-X y d_{hkl} es la distancia interplanar para un conjunto de planos difractados (hkl) . Para predecir el ángulo de difracción de un cierto conjunto de planos, se combina la ley de Bragg con la ecuación aplicable a la estructura particular de la muestra de interés que relaciona la distancia interplanar con el parámetro de red a . Por ejemplo, para un sistema cúbico se cumple que $\lambda^2 = 4d^2 \sin^2 \theta = 4 \frac{a^2}{h^2 + k^2 + l^2} \sin^2 \theta$.
- La intensidad relativa de los picos de difracción. Para el caso de un polvo, está determinada por seis factores intrínsecos:
 1. Factor de estructura: el factor de dispersión atómico es proporcional al número de electrones y la amplitud dispersada de toda la celda unidad está dada por la suma de las contribuciones de cada átomo, en la cual también hay que tomar en consideración la diferencia de fase entre todas las ondas dispersadas.
 2. Factor de multiplicidad: se define como el número de permutaciones de posición y signo de $\pm h, \pm k, \pm l$ para los planos que tienen iguales valores de d_{hkl} y del factor de estructura.
 3. Factor de Lorentz: toma en consideración diferentes factores geométricos y resulta en una dependencia angular de la intensidad de la forma $1/4\sin^2\theta\cos\theta$.
 4. Factor de polarización: la intensidad del haz dispersado es máxima en la dirección del haz incidente y luego decae a medida que aumenta el ángulo de incidencia.
 5. Factor de absorción: toma en cuenta la disminución de la intensidad con el camino recorrido a través del cristal.
 6. Factor de temperatura: la intensidad cae debido a la agitación térmica de los átomos en la red cristalina. Este efecto también es dependiente del ángulo de difracción.
- Idealmente los picos de difracción debieran ser infinitamente angostos. El ensanchamiento de los picos es básicamente el resultado de factores instrumentales (tales como la divergencia del haz, el que la fuente no sea estrictamente monocromática, etc.) y la contribuciones de la muestra. Las más importantes son el ensanchamiento debido al tamaño finito de los granos y efectos debido a microtensiones entre las cristalitas.
- También es posible identificar la fase cristalina del material, dado que cada fase produce un patrón de difracción característico.

Además de la información que brinda la posición, la intensidad y la forma de los picos de difracción en un difractograma convencional de rayos-X, existen diferentes técnicas que permiten obtener más información, principalmente acerca de aspectos estructurales. Entre la gran variedad de aplicaciones, existen dos que hemos usado a lo largo de la tesis para caracterizar algunas series de muestras: el método $\sin^2 \psi$, para la medida de tensiones residuales, y las figuras de polos para caracterizar las texturas.

A pesar de que existen diversos métodos para medir las tensiones residuales en una película delgada, uno de los más utilizados es el llamado $\sin^2 \psi$, quizás por ser una técnica que no requiere de equipamiento demasiado especializado y es no destructiva. En resumen, el método se basa en que la posición de un pico de difracción se desplaza a medida que la muestra es rotada en un ángulo ψ (ver esquema de la Fig. 2.2) y este desplazamiento es proporcional a la magnitud de las tensiones residuales en la película [54].

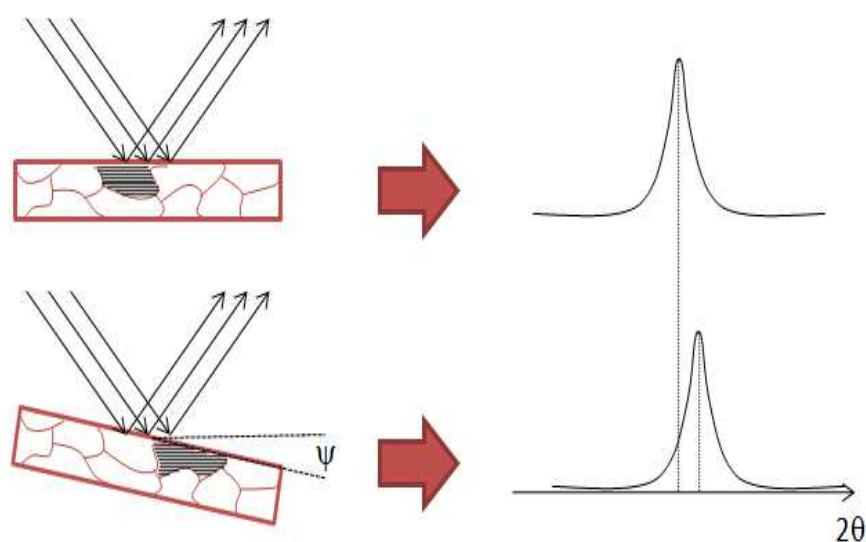


Figura 2.2: Desplazamiento en 2θ de un pico de difracción. A medida que aumentamos el ángulo ψ , la posición cambia a menores o mayores ángulos dependiendo del tipo de tensiones presentes, de compresión o expansión, respectivamente.

Un policristal es un material compuesto por un conjunto de pequeños cristales, denominados granos o cristalitas, con diferentes tamaños y orientaciones. A la orientación cristalográfica preferencial de estos granos respecto a un sistema de referencia fijo, se la llama textura. La textura cristalográfica refleja entonces la probabilidad de encontrar granos con una dada orientación, es decir, con la normal a una familia de planos $\{hkl\}$ perpendicular a un plano característico de la muestra. La orientación preferencial tiene un fuerte impacto en las intensidades relativas de los picos de difracción (no lo hemos considerado en la enumeración anterior de los factores que influyen en la intensidad de los picos, ya que no es una característica

intrínseca del material o de la estructura cristalina).

A través de difracción de rayos-X también es posible estudiar el grado de textura presente en una muestra policristalina. La primera evidencia de la orientación preferencial de los granos es observar y comparar la intensidad de los picos de difracción con los de una muestra con granos distribuidos al azar.

Otro método que brinda mayor información, consiste en realizar las llamadas figuras de polos. Cada figura de polo es una representación estereográfica de una familia de direcciones $\langle hkl \rangle$ particular (llamada polo) que se utiliza para representar la distribución de orientaciones de los planos cristalográficos. Estas son figuras bidimensionales, en las cuales cada punto indica la dirección específica en la cual apunta la normal del plano (hkl) en un grano. A modo de ejemplo, en la Fig. 2.3 se muestra la proyección estereográfica para la familia de planos $\{100\}$ para un solo cristal de simetría cúbica.

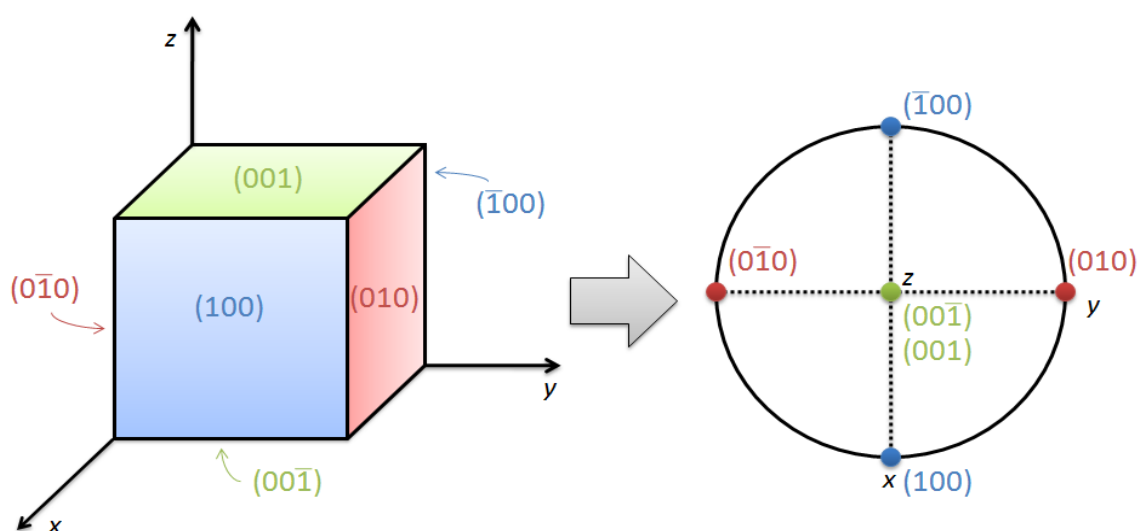


Figura 2.3: Esquema de la construcción de una figura de polos de la familia de planos $\langle 100 \rangle$ de una muestra monocristalina con simetría cúbica. Se representa una celda unidad orientada con la dirección (001) alineada con el eje z y su contribución a una figura de polos bidimensional.

El método de medición más comúnmente empleado es el llamado “método de Schulz” [55]. Este consiste en fijar el detector en el máximo de intensidad $2\theta_{hkl}$ de la reflexión (polo) que se desea estudiar. De esta forma, la intensidad del haz reflejado es proporcional a la cantidad de granos que se encuentren en condición de difracción, esto es, con la normal a la reflexión (hkl) apuntando en dirección perpendicular al plano. Utilizando una cuna de Euler, dejando $2\theta_{hkl}$ fijo se rota la muestra y cristalitas con otras orientaciones entran en condición de difracción. Esto nos permite construir una figura en dos dimensiones que representa las orientaciones espaciales

preferenciales de una dada familia de planos. Se utiliza una escala de colores para representar la cantidad de cristales que cumplen la condición de difracción.

En la sección 4.3.2 del capítulo 4 describimos con más detalle el método y la geometría de medición que utilizamos para medir tensiones y texturas.

Para los difractogramas $\theta - 2\theta$ utilizamos un difractómetro de polvo marca Philips modelo PW-1700, con tubo de rayos X con ánodo de cobre que trabaja, en condiciones normales, a 40 kV y 50 mA y longitud de onda $\lambda_{\text{Cu-K}\alpha 1} \sim 0.15406$ nm y $\lambda_{\text{Cu-K}\alpha 2} \sim 0.154443$ nm. Las reflexiones K_β son eliminadas automáticamente mediante un monocromador de grafito. Las medidas de tensiones y textura fueron realizadas en un difractómetro PANalytical Empyrean equipado con un módulo PreFix que permite intercambiar fácilmente diferentes configuraciones pre-alineadas. Cuenta con un detector PIXcel 3D1 y un tubo de rayos X cerámico que opera a 45 kV y 20 mA. Las mediciones se realizaron utilizando un filtro de Ni de 20 μm de espesor, que reduce la intensidad de radiación K_β un 99%. El goniómetro está configurado para operar en geometría $\theta - \theta$ con un paso mínimo de 0.0001° . Para medidas de tensiones y texturas suele utilizarse una cuna de Euler, que cuenta con tres motores que permiten mover de forma independiente los ángulos χ y ϕ en un rango de -3° a 93° y 0° a 360° , respectivamente, con un paso mínimo de 0.01° . Ambos equipos se encuentran ubicados en el Laboratorio de Ciencia de Materiales en el Centro Atómico Bariloche.

2.2.2. Técnicas espectroscópicas

También hemos utilizado diferentes técnicas espectroscópicas con el fin de determinar la composición, tanto del blanco como de las diferentes series de películas. A continuación describiremos brevemente en qué consiste cada una de ellas.

Fluorescencia de rayos-X por energía dispersiva (EDS)

En esta técnica se focaliza un haz de electrones sobre la muestra que penetra en los átomos del material, arrancando electrones de las capas más internas de los átomos con los que interaccionan. Para volver del estado ionizado un electrón de la capa más externa pasa a ocupar el hueco, por lo que el átomo debe emitir la energía equivalente a la diferencia entre el nivel vacante y el nivel del electrón que ocupa el hueco. La energía de los rayos-X emitidos durante este proceso de relajación es característica del elemento del que provienen y de la transición que la produce. Por lo tanto, es posible identificar un elemento dentro del espectro de la muestra si se conoce la energía entre los orbitales atómicos implicados.

En esta técnica se utiliza un sistema de detección que no solo mide la energía de los rayos-X característicos para identificar el elemento del cual provienen, sino que

también se realiza un conteo de los fotones para poder cuantificar la composición química de la muestra. La proporción de los distintos elementos se obtiene luego de realizar correcciones a las intensidades medidas debido a efectos de número atómico Z , absorción y fluorescencia.

La preparación de la muestra es relativamente sencilla. Se necesita que sea sólida y conductora. En caso contrario, suele recubrirse con una capa delgada de un material conductor como oro o carbón para darle propiedades conductoras. Las muestras que no pueden ser metalizadas pueden medirse en condiciones especiales que minimizan la acumulación de carga en la superficie.

Las mediciones de EDS fueron realizadas con un microscopio electrónico de barrido (SEM) Phillips 515 que cuenta con un detector de electrones secundarios (SE) y otro EDS. Se tomaron datos en dos zonas diferentes de la película durante 200 s. El tamaño de las áreas es de aproximadamente $0.2 \times 0.3 \text{ mm}^2$ y se utilizó un voltaje de 20 kV y un aumento $300\times$. El error nominal dado por el instrumento es $\sim 1\%$.

Espectroscopía de fotoelectrones emitidos por rayos-X (XPS)

Un experimento de XPS se realiza típicamente excitando una muestra con rayos-X monocromáticos (habitualmente el ánodo puede ser de Al o Mg), provocando la emisión de electrones en la superficie. La energía de los fotones con los que se irradia la muestra debe ser lo suficientemente alta para arrancar electrones (llamados fotoelectrones) desde la banda de valencia o desde capas más cercanas al núcleo. Se utiliza un analizador para medir la energía cinética y el número de fotoelectrones que escapan de la superficie del material analizado. A partir de la energía de enlace y la intensidad de un pico de fotoelectrones, pueden ser determinados los elementos que forman la muestra, la cantidad relativa de cada elemento presente y el estado químico.

Es uno de los métodos más ampliamente utilizados porque las muestras no requieren de gran preparación y no es necesario que sean conductoras, como es el caso de EDS. Esta técnica proporciona información química cuantitativa del estado de la superficie del material que está siendo estudiado hasta una profundidad aproximada de 5 nm. Al ser una técnica altamente superficial, es habitual exponer a la muestra a un ataque físico por *sputtering* entre mediciones, para crear de esta forma un perfil de la composición en profundidad.

Las medidas de XPS fueron realizadas en el Laboratorio de Colisiones Atómicas en el Centro Atómico Bariloche. El equipo cuenta con una cámara de ultra alto vacío (10^{-10} Torr) con un analizador electrostático de la energía cinética de los electrones emitidos, un espectrómetro de masas, y cañones de rayos X (Al, Mg, Zr y Mo), de electrones y de iones de Ar para limpieza por *sputtering*.

Espectrometría de retrodispersión Rutherford (RBS)

Se llama retrodispersión de Rutherford a una colisión elástica entre una partícula con alta energía cinética (haz incidente) y una partícula estacionaria (muestra) y se basa en el principio de repulsión de Coulomb. En un experimento RBS, el material a analizar es bombardeado por un haz de partículas, normalmente protones o partículas alfa, con energías típicas del orden de los MeV que colisionan de forma elástica con los átomos del blanco, siendo dispersadas con una energía característica que es utilizada para determinar la estructura y composición de la muestra. Una fracción de los átomos del haz incidente son retrodispersados por los átomos más pesados cerca de la superficie de la película y luego son contados por un detector, generalmente de estado sólido, que mide su energía. La energía de una partícula retrodispersada está relacionada con la profundidad y la masa de los átomos de la muestra, mientras que el número de partículas retrodispersadas detectadas es proporcional a la concentración. Esta relación se utiliza para generar un perfil en profundidad cuantitativo de hasta $\sim 1\text{-}2\ \mu\text{m}$.

Las aplicaciones principales de un experimento RBS son los perfiles en profundidad cuantitativos de la estequiometría en películas delgadas, que nos permite estudiar interfaces, capas finas y estructuras multicapa con espesores entre los 10 y los 1000 nm, además de permitir realizar análisis de cristalinidad, agentes de dopado e impurezas. También tiene la ventaja de ser una técnica no destructiva que no requiere de una compleja preparación de las muestras y cuenta con la posibilidad de realizar análisis cuantitativos sin la necesidad de patrones.

Los espectros se obtuvieron en el Acelerador de iones Tándem de tensión máxima de aceleración 1.7 MV, ubicado en el Laboratorio de Colisiones Atómicas en el Centro Atómico Bariloche. Se utilizaron partículas alfa de 2 MeV con intensidad de 3.5 nA para una carga acumulada sobre las muestras de 1 a 2 μC .

2.3. Medidas magnéticas

En esta sección describiremos resumidamente algunas características de las principales técnicas de caracterización magnética que hemos utilizado a lo largo de los capítulos siguientes.

2.3.1. Técnicas de magnetometría

Al estudiar el comportamiento de películas únicas y bicapas ferromagnéticas es de vital importancia realizar una caracterización cuidadosa de la respuesta de la magnetización con el campo. Para ello, utilizamos principalmente un magnetómetro de muestra vibrante (VSM). Para mediciones a bajas temperaturas se recurrió a un

SQUID y, finalmente, utilizamos magnetometría por efecto Kerr para caracterizar el comportamiento de la magnetización en las capas superiores de una serie de bicapas.

Magnetómetro de muestra vibrante (VSM)

El VSM es un equipo ampliamente utilizado para el estudio de las propiedades magnéticas en función del campo externo aplicado. A su vez nos permite realizar experimentos en los que se controlan parámetros externos, tales como temperatura, tiempo y posición de la muestra. De esta forma podemos realizar mediciones de remanencia, relajaciones, variaciones angulares, entre otras. Se basa en el principio de inducción de Faraday, el cual nos dice que un campo magnético variable inducirá un voltaje en un circuito cerrado [56].

En nuestro caso, se utilizó un VSM comercial LakeShore modelo 7300. Este equipo cuenta con dos juegos de piezas polares que permiten un campo magnético máximo de 1.8 T y 2.1 T. También puede adosarse un criostato de He o bien un horno que permiten cubrir un rango de medición de 4.2 K a 1000 K. La sensibilidad bajo condiciones normales de medición es de aproximadamente 10^{-5} emu.

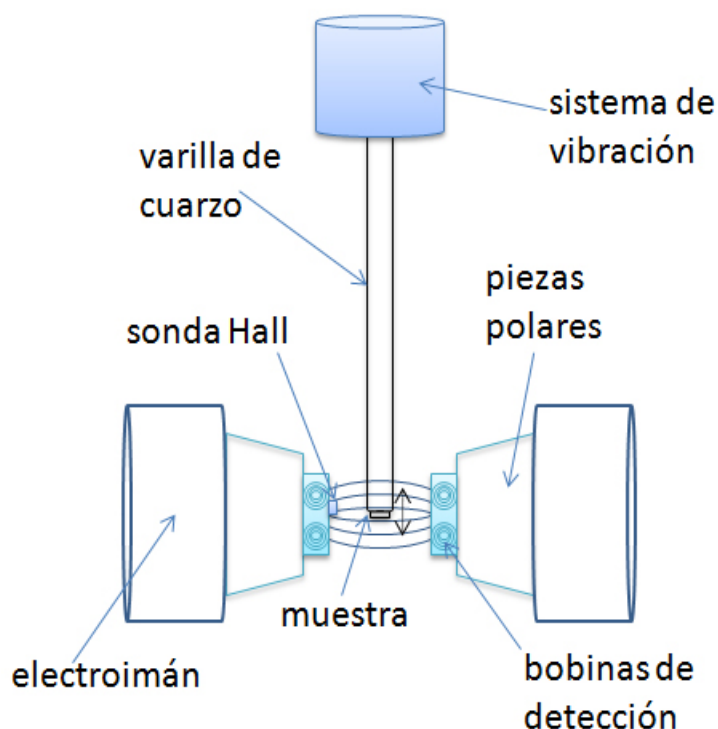


Figura 2.4: Esquema de funcionamiento de un magnetómetro de muestra vibrante típico.

La muestra se adhiere a una varilla de cuarzo y es sometida a una oscilación armónica únicamente en el eje vertical, perpendicular al campo magnético generado por el electroimán (ver esquema de funcionamiento de la Fig. 2.4) con una frecuencia

de aproximadamente 80 Hz y una amplitud de unos pocos milímetros. El campo magnético de la muestra oscilante induce un voltaje en las bobinas de detección proporcional a la magnetización de la muestra, la frecuencia de oscilación y el tiempo. Típicamente, el voltaje inducido en las bobinas es medido por un amplificador lock-in y es proporcional a la proyección de \vec{M} en el eje que une las bobinas detectoras. La constante de proporcionalidad se obtiene a través de una calibración del equipo, para la cual se utiliza una esfera de níquel de momento magnético conocido, 6.92 emu, para un campo externo de 5000 Oe.

Magnetómetro SQUID

El magnetómetro SQUID toma su nombre por sus siglas en inglés: *Superconducting Quantum Interference Device* o Dispositivo superconductor de interferencia cuántica, que es un sensor de flujo magnético extremadamente sensible. El funcionamiento de un magnetómetro SQUID está basado en el método de inducción, es decir, mide el voltaje inducido por la variación del campo magnético generado por la muestra a través de un sistema de bobinas. Este equipo es extremadamente útil cuando se tienen señales muy bajas, ya que, en teoría, se pueden detectar momentos magnéticos de hasta 10^{-8} emu.

El equipo utilizado fue un magnetómetro SQUID Quantum Design MPMS-5S que se encuentra en el Laboratorio de Bajas Temperaturas del Centro Atómico Bariloche. Este es un equipo comercial que permite mediciones a temperaturas entre 2 y 400 K, con un campo magnético máximo de hasta 5 T. La sensibilidad es de 10^{-6} emu, y satura para magnetizaciones mayores a 3 emu.

Magnetometría por efecto Kerr magneto-óptico (MOKE)

La magnetometría por efecto Kerr magneto-óptico se basa en la proporcionalidad entre la magnetización de un material y el cambio en la polarización de luz reflejada en la superficie de la muestra. El efecto Kerr proporciona un método óptico simple y directo para la caracterización de las propiedades magnéticas de la superficie de los materiales.

Básicamente, un experimento de magnetometría Kerr consiste en hacer incidir un haz de luz visible polarizada linealmente que se refleja en la superficie de la muestra. A través de la medición de pequeños cambios en la polarización del haz reflejado, es posible extraer información cualitativa de la magnetización en la muestra. Un experimento de MOKE puede realizarse en función de un campo magnético externo, lo que resulta en la medida de un lazo de histéresis del material [57].

El equipo para la medición de un experimento MOKE consta de tres partes fundamentales: la óptica, el electroimán con su fuente de alimentación y el conjunto de instrumentación y control. El conjunto óptico está conformado por: láser,

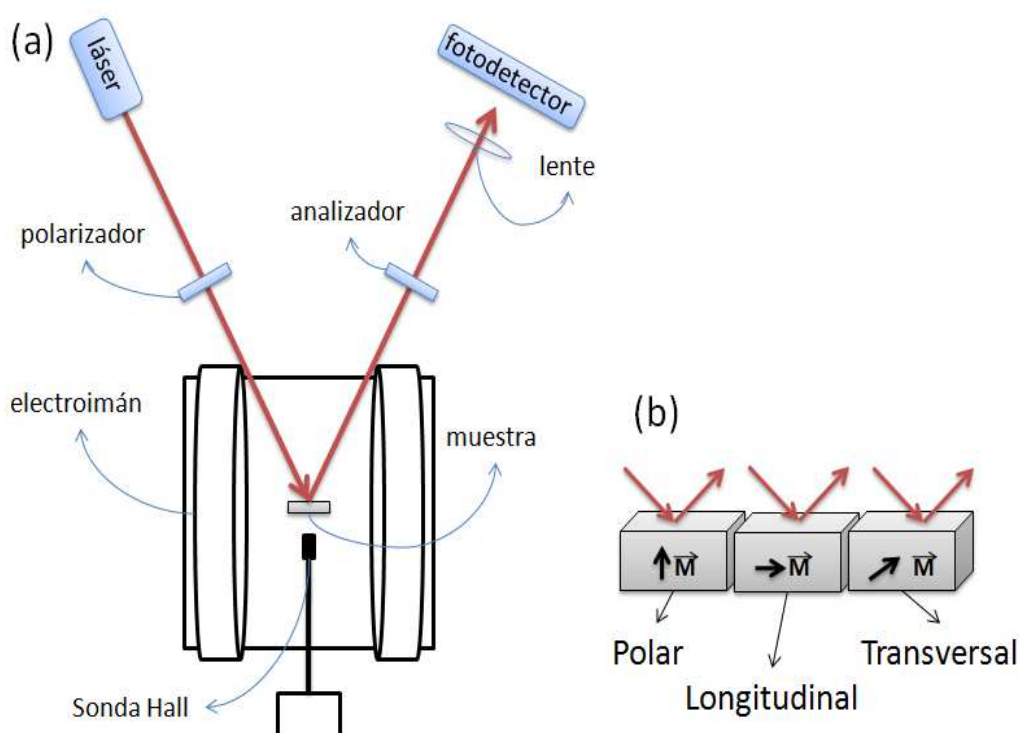


Figura 2.5: (a) Esquema general de la configuración de medición por magnetometría por efecto Kerr magneto-óptico. (b) Configuraciones geométricas típicas para un experimento MOKE.

polarizador, analizador (en general, el ángulo entre los polarizadores es cercano a 90°) y lentes focalizadores [56]. Un experimento MOKE puede ser realizado en tres geometrías diferentes, las cuales se clasifican según la orientación relativa del vector magnetización con respecto a la superficie de la muestra y al plano de incidencia de la luz. En el esquema de la Fig. 2.5 (a) se muestra la configuración básica para un experimento MOKE y en (b) las configuraciones geométricas más comunes.

Para las mediciones por efecto Kerr utilizamos un láser de longitud de onda $\lambda = 632 \text{ nm}$ (rojo) con una potencia incidente de aproximadamente 1 mW , polarización incidente vertical y configuración longitudinal. El campo externo aplicado es paralelo al plano de las películas, con un campo máximo disponible de 4000 Oe .

2.3.2. Microscopio de fuerza atómica/magnética (AFM/MFM)

El AFM es un tipo especial de microscopio de sonda de barrido con una resolución lateral del orden de algunas decenas de nanómetro. Básicamente, su funcionamiento se basa en las fuerzas del tipo Van der Waals existentes entre la punta y la superficie de la muestra en estudio. La microscopía de fuerza magnética, o MFM, es un modo especial de operación del microscopio de fuerza atómica. Poco después de la invención del

AFM, se descubrió que es posible utilizar el mismo sistema para detectar interacciones magnetostáticas, adicionando un recubrimiento ferromagnético a la sonda de medición. En la Fig. 2.6 se muestra la configuración típica y las componentes más importantes de un AFM/MFM.

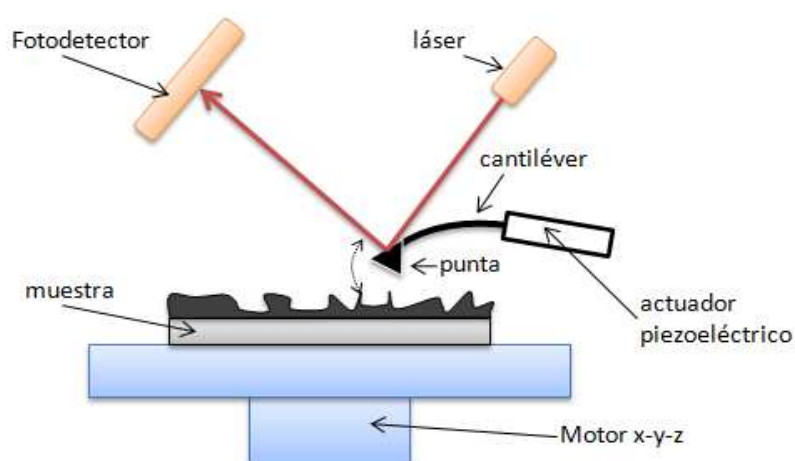


Figura 2.6: Esquema de los componentes principales de un microscopio de fuerza magnética.

Los dos modos de operación más comúnmente utilizados son el modo contacto y *tapping*. En este último, el cantiléver oscila a una frecuencia cercana a la de resonancia natural. El equipo cuenta con un tubo piezoeléctrico que le permite realizar movimientos verticales y horizontales con un alto grado de precisión. De esta forma, se corrige la altura del cantiléver para que la amplitud de la oscilación se mantenga constante, mapeando la topografía de la muestra. Los desplazamientos en altura del cantiléver son censados a través de un láser que incide sobre el extremo del cantiléver y se refleja en un conjunto de fotodiodos. Para tomar una imagen de la estructura magnética, se realiza un segundo barrido en el cual la altura del cantiléver se eleva entre 10-30 nm (modo *lift*), dependiendo de las condiciones de medición y la señal de la muestra. De esta forma, es posible disminuir la interacción de Van der Waals, que decae más rápidamente que las fuerzas magnetostáticas [58], y separar ambas contribuciones.

Las medidas se hicieron en un microscopio AFM/MFM, marca Veeco (actualmente Bruker) modelo Dimension 3100 con electrónica Nanoscope IV, que se encuentra en el Laboratorio de Resonancias Magnéticas. Además, es posible adicionar un electroimán que permite aplicar un campo externo de hasta ± 300 Oe en dirección paralela al plano de barrido o perpendicular a la superficie de la muestra.

2.3.3. Resonancia ferromagnética (FMR)

La Resonancia ferromagnética (FMR) se basa en el hecho de que al aplicar un campo externo \vec{H} a un momento magnético $\vec{\mu}$ se induce la precesión de este último a una frecuencia angular $\omega = \gamma H$ (llamada frecuencia de Larmor), donde $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar}$ es el denominado factor giromagnético, g se denomina factor- g , μ_B es el magnetón de Bohr y \hbar es la constante de Planck reducida.

En un material ferromagnético, debido a la fuerte interacción entre espines, la magnetización relaja en la dirección de un campo efectivo que tiene en cuenta las interacciones entre espines y las diferentes anisotropías. La absorción resonante de energía ocurre cuando se aplica un campo alterno a la frecuencia de Larmor.

Desde un punto de vista cuántico, la resonancia surge cuando se rompe la degeneración del estado fundamental de un sistema de momentos magnéticos por encontrarse inmerso en un campo magnético externo H (efecto Zeeman). Para electrones libres, la separación entre los niveles es proporcional a la intensidad del campo externo $\Delta E = g\mu_B H$. Estos pueden moverse entre niveles absorbiendo o emitiendo un fotón de energía $h\nu = \Delta E$, de forma tal que se cumpla la condición de resonancia [29]. En un experimento de resonancia magnética, el fotón proviene de un campo magnético oscilante.

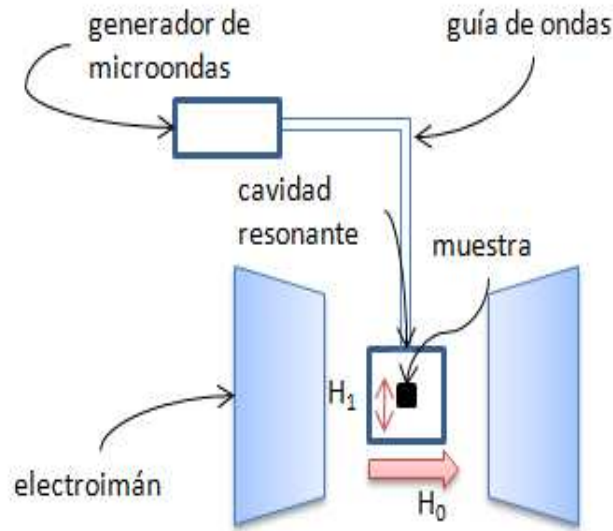


Figura 2.7: Esquema de un experimento de resonancia magnética típico. En general, se mantiene fija la frecuencia del campo de microondas \vec{H}_1 y se varía la amplitud de \vec{H} hasta encontrar la absorción resonante.

En la Fig. 2.7 esquematizamos el equipamiento experimental. Desde el punto de vista práctico, en un experimento de resonancia ferromagnética se trabaja con una fuente de microondas de frecuencia fija y, como la frecuencia de precesión ω depende del valor del campo magnético aplicado, se varía la magnitud de \vec{H} hasta encontrar

la resonancia. Además del campo magnético externo, hay que considerar el pequeño campo magnético oscilante (\vec{H}_1 en el esquema de la Fig. 2.7) correspondiente a la onda electromagnética. La señal generada en la fuente de microondas se transmite por una guía de onda e incide sobre la muestra colocada en una cavidad que se encuentra entre las piezas polares de un electroimán que produce un campo DC. La cavidad resonante es básicamente una caja metálica con un diseño particular que permite la existencia de modos estacionarios en su interior. Cuando la frecuencia de precesión de la magnetización coincide con la de la microonda se produce una absorción que es detectada por la electrónica del equipo [59].

La mayor parte de las mediciones de resonancia que utilizamos en esta tesis se realizaron en un Espectrómetro Bruker modelo ESP 300 ubicado en el Laboratorio de Resonancias Magnéticas (CAB). Se encuentran disponibles cuatro puentes de microondas a frecuencias 1.2 GHz (banda-L), 9.4 GHz (banda-X), 24 GHz (banda-K) y 35 GHz (banda-Q). El equipo cuenta con un electroimán que permite variar el campo magnético entre 0 y 2.1 T y un límite de detección de aproximadamente 10^{13} espines/Oe. Las mediciones a altas frecuencias $f \sim 94$ GHz (banda-W) fueron hechas en un Bruker Eleksys E680 en el Departamento de Física de la Universidad de Amberes, Bélgica.

Capítulo 3

Espesor crítico e interacciones magnéticas en películas delgadas de FePt

3.1. Motivaciones y objetivos

Se fabricó una serie de películas con espesores entre 9 y 94 nm usando técnicas de *sputtering* DC sobre sustratos de silicio (100) con una capa de óxido nativo en la superficie. Debido a las condiciones de fabricación, las películas crecen sujetas a tensiones biaxiales de compresión en el plano que, junto con el coeficiente de magnetostricción positivo del FePt, generan un eje de fácil magnetización en la dirección normal al plano. Por otro lado, al igual que en la mayor parte de metales fcc, las películas de FePt tienden a crecer con una fuerte textura en la dirección [111] que a su vez coincide con un eje de fácil magnetización magnetocristalino. Mientras que la anisotropía de forma tiende a alinear a la magnetización M en el plano de la película, las otras dos anisotropías favorecen un alineamiento perpendicular. Aún cuando la anisotropía perpendicular sea más baja que el término desmagnetizante, es posible observar una estructura de dominios en forma de *stripes* por encima de un cierto espesor crítico d_{cr} , en el cual una componente de la magnetización se encuentra perpendicular al plano.

En trabajos anteriores, nuestro grupo ha reportado [18, 25] un estudio detallado en la misma serie de muestras con las cuales trabajamos en este capítulo, haciendo evidente un cambio notable en la respuesta magnética cuando se varía el espesor. En las secciones siguientes exploramos con mayor profundidad la dependencia del espesor crítico con el factor de calidad, así como su variación con temperatura basándonos en mediciones de magnetización DC. También se realizaron medidas de remanencia y viscosidad magnética, que nos permitieron extraer información del cambio en las

interacciones dominantes cuando $d \geq d_{\text{cr}}$. Finalmente, presentamos un análisis detallado de la respuesta dinámica utilizando espectroscopía de Resonancia Ferromagnética en un amplio rango de frecuencias, de 1 a 100 GHz.

3.2. Medidas Magnéticas

En la presente sección mostramos estudios de los efectos de tensiones en las películas, particularmente cómo modifican la estructura de dominios magnéticos. Para ello se midieron curvas de magnetización DC en función del campo externo en un rango de temperaturas $4 \text{ K} \leq T \leq T_{\text{amb}}$. Debido a la diferencia en la expansión térmica del FePt y del sustrato de Si y a la dependencia de M_s con T , se predice una reducción progresiva del factor de calidad a medida que disminuye la temperatura, lo que a su vez se traduce en un cambio en d_{cr} .

En la sección 3.2.2 se realizaron mediciones de lazos de histéresis, relajación magnética y curvas de remanencia a temperatura ambiente para caracterizar las interacciones magnéticas presentes en una serie de muestras con espesores entre 9 y 94 nm. En las medidas de remanencia magnética pudimos observar un cambio en las interacciones predominantes, de tipo intercambio en las muestras más delgadas a tipo dipolar en las más gruesas, coincidente con la aparición de dominios magnéticos en forma de *stripes*.

A continuación presentamos medidas experimentales de los efectos que se producen en la estructura magnética debida a la variación de T .

3.2.1. Dependencia con la temperatura del espesor crítico

Como discutimos anteriormente, una de las componentes de K_{\perp} es inducida por efectos de tensiones. Los diferentes coeficientes de expansión térmica entre el sustrato de Si y el FePt producen una deformación en la interfaz, lo que nos permite modificar K_{\perp} , y consecuentemente el factor de calidad, a medida que cambiamos la temperatura de las películas.

Los detalles de la fabricación de esta serie de muestras se encuentran explicados en detalle en la Tesis de maestría [34] y en publicaciones previas [18]. A modo de resumen destacamos que las películas fueron fabricadas por medio de técnicas de *sputtering* DC en sustratos de Si (100) naturalmente oxidado, a temperatura ambiente y bajo una presión de argón constante de aproximadamente 3 mTorr, utilizando un blanco de FePt de composición nominal 50/50. Se crecieron ocho muestras con diferentes espesores: 9, 19, 28, 35, 42, 49, 56 y 94 nm.

Medidas de magnetización y microscopía de fuerza magnética

Se tomaron imágenes de microscopía de fuerza magnética (MFM) en el estado remanente y a temperatura ambiente para toda la serie. La microscopía MFM es una técnica sensible al campo disperso de la muestra, midiendo la fuerza de origen magnético a través de la deflexión de un cantiléver con una punta en el extremo (esquemático en la Fig. 2.6), magnetizada en la dirección longitudinal, por lo que censa la componente perpendicular de la magnetización. Encontramos poco contraste en las muestras con espesores ≤ 28 nm, lo que nos indica que la magnetización está principalmente dentro del plano de la película. Debido a que el tamaño de los dominios es mucho mayor que la máxima región que puede barrer el microscopio ($\sim 100 \times 100 \mu\text{m}$) hallamos difícil localizar paredes de dominio, excepto en las regiones cercanas a los bordes de la muestra donde la densidad de paredes se incrementa debido a la formación de dominios de clausura. En la película de 19 nm de espesor fue posible encontrar una pared del tipo “*cross-tie*”, como la que se muestra en la Fig. 3.1(a), que confirma la estructura de dominios planares en las películas más delgadas. Ejemplos de mediciones de magnetización en función del campo magnético en el plano se incluyen en la Fig. 3.1 (c) y (d) para dos muestras representativas, de $d = 19$ y 94 nm. En particular, en la Fig. 3.1 (c) se observa principalmente un factor de cuadratura y magnetización de remanencia altos, ambos característicos de dominios planares, y un campo coercitivo relativamente pequeño $H_{\text{coer}} \lesssim 20$ Oe para $d \leq 19$ nm. Para $d = 28$ nm hallamos $H_{\text{coer}} \sim 40$ Oe.

Para películas con espesores $d \geq 35$ nm encontramos un comportamiento magnético radicalmente diferente. Las imágenes de microscopía en la remanencia presentan una estructura de dominios periódica, en forma de tiras o *stripes*, alineadas en la dirección del campo externo aplicado antes de la medición. Este contraste puede verse en las imágenes de MFM cuando se tiene una componente de la magnetización fuera del plano, alternando el sentido en las zonas oscuras y brillantes de la imagen. La curva de magnetización con campo aplicado paralelo al plano de la película que se muestra en la Fig. 3.1 (d) presenta características distintivas que se corresponden con este tipo de estructura magnética. En primer lugar, notamos una región lineal a bajos campos, desde aproximadamente $H = 0$ hasta el campo de saturación en el plano, $H_{s\parallel}$, relacionada con la rotación de la componente de la magnetización fuera del plano hacia el campo externo. Además, cuando $d \geq d_{\text{cr}}$, la relación entre la saturación y la magnetización de remanencia M_{rem} decrece a medida que aumenta el espesor. El campo coercitivo también aumenta de forma abrupta, $H_{\text{coer}} \gtrsim 120$ Oe (debido mayormente al aumento en la densidad de paredes de dominios), en comparación con películas con dominios planares en las cuales $H_{\text{coer}} \lesssim 40$ Oe. A pesar de que solo presentamos en la Fig. 3.1 dos muestras, las características que detallamos anteriormente, tanto para las imágenes

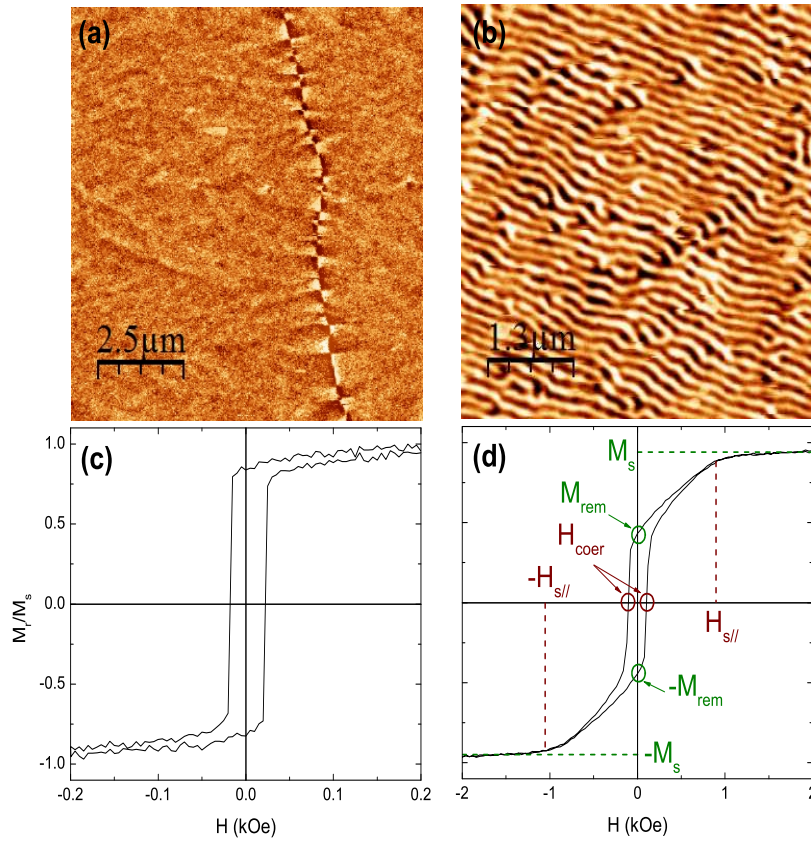


Figura 3.1: Imágenes de MFM de dos películas con espesores $d = 19$ nm (a) y 94 nm (b). La pared de dominio tipo *cross-tie* que puede verse en (a) pudo ser medida luego de desmagnetizar la muestra haciéndola rotar dentro de un campo decreciente. En (b) se muestra el estado remanente luego de haber saturado la película fuera del microscopio con un campo externo ~ 5 kOe. El tamaño de las imágenes es de 10×10 y 5×5 μm , respectivamente. Debajo de cada imagen se incluyen los lazos de histéresis correspondientes medidas con campo aplicado paralelo al plano de la película ((c) y (d)). En (d) también se señalan los campos coercitivos H_{coer} y de saturación paralelo $H_{s||}$, junto con las magnetizaciones de remanencia M_{rem} y de saturación M_s . Notar las diferentes escalas de campo magnético en los paneles (c) y (d).

MFM como para las curvas de magnetización, se mantienen para el resto de las películas de la serie.

Es clara la estrecha relación entre la existencia de dominios en *stripes* y la forma y características generales de la correspondiente curva de magnetización. Una de las características que delata la existencia o no de *stripes* en este tipo de películas es H_{coer} . Dado que el MFM con el que cuenta nuestro laboratorio solo puede realizar mediciones a temperatura ambiente, no es posible medir la transición de forma directa. Si se quiere estudiar el cambio del tipo de configuración de dominios magnéticos con la temperatura, puede aprovecharse la correlación de d_{cr} con las curvas de magnetización y, en particular, con el campo coercitivo. En la Fig. 3.2 se muestran las curvas M vs. H para las películas de 42 y 94 nm de espesor a tres temperaturas diferentes $T = 80$,

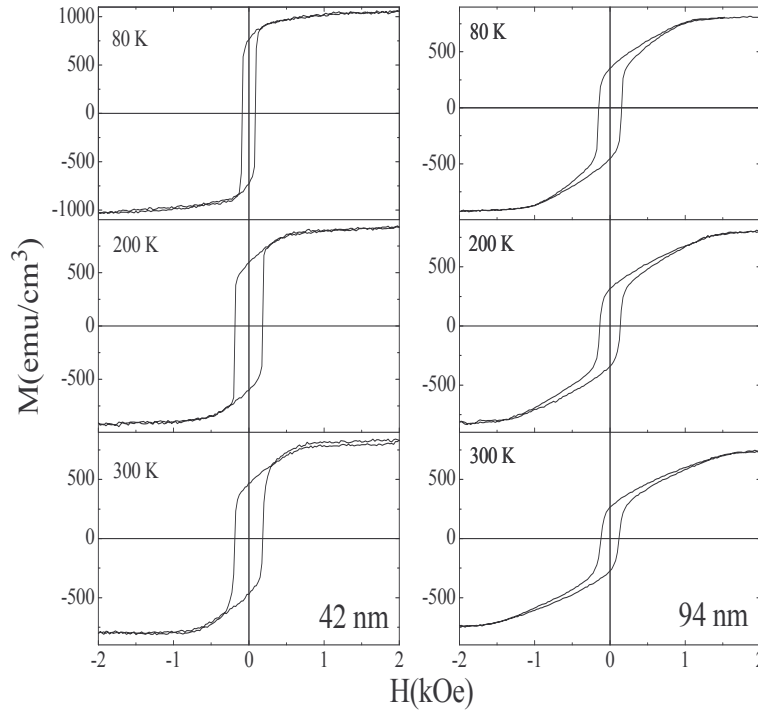


Figura 3.2: Curvas de magnetización a diferentes temperaturas para $d = 42$ nm (izquierda) y $d = 94$ nm (derecha). Para la película más delgada el campo coercitivo comienza a decrecer por debajo de $T \sim 240$ K, mientras que para $d = 94$ nm H_{coer} se incrementa de forma constante a medida que bajamos la temperatura.

200 y 300 K. Las curvas de magnetización para $T \geq 80$ K fueron tomadas con un Magnetómetro de Muestra Vibrante (VSM) LakeShore modelo 7300, mientras que las medidas de campo coercitivo para temperaturas hasta 5 K se realizaron en un SQUID Quantum Design con un campo máximo de 5 T.

En las curvas de magnetización hasta $T = 5$ K de la muestra más gruesa ($d = 94$ nm), puede notarse que existe un incremento en el campo coercitivo y una reducción gradual de los valores del campo de saturación. Estos resultados indican que esta película mantiene la estructura en *stripes* en todo el rango de temperaturas. Sin embargo, para la película con $d = 42$ nm, el comportamiento es diferente. El campo coercitivo primero aumenta hasta llegar a un máximo para $T \sim 240$ K y luego comienza a decrecer, presentando curvas de magnetización bastante similares aún hasta $T \sim 200$ K. Sin embargo, a temperaturas más bajas, la región lineal en los lazos de histéresis desaparece y H_{coer} se reduce hasta aproximadamente la mitad del valor máximo. Con el objetivo de caracterizar en mayor profundidad este comportamiento, medimos el campo coercitivo en función de la temperatura para cada una de las muestras de esta serie. En la Fig. 3.3 mostramos los resultados de H_{coer} vs. T .

En algunas películas puede verse que el campo coercitivo aumenta suavemente cuando la temperatura disminuye, pero cuando el espesor se encuentra en el rango 35

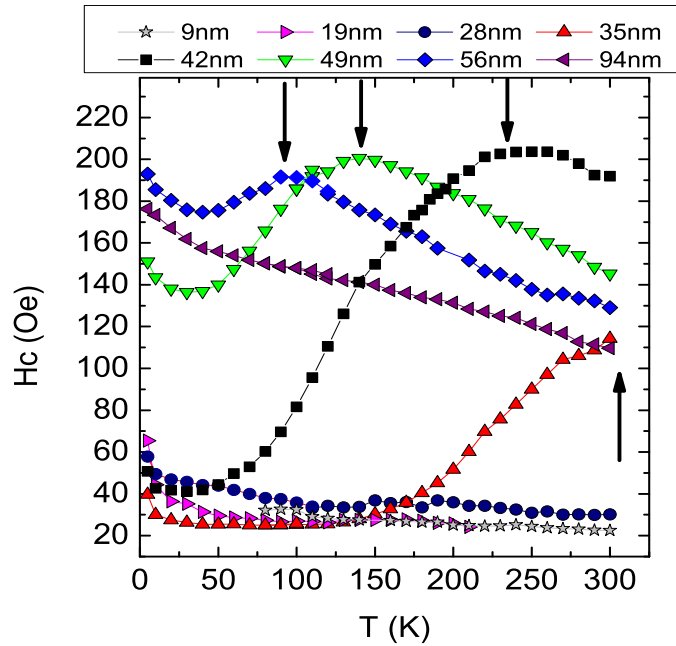


Figura 3.3: Variación con la temperatura del campo coercitivo. Las flechas verticales señalan la temperatura en donde H_{coer} comienza a decrecer. Notar que para las películas con $d \leq 28$ nm o $d \geq 94$ nm el campo coercitivo no presenta un máximo, sino que siempre crece a medida que la temperatura baja.

$\text{nm} \leq d \leq 56$ nm existe un comportamiento inusual. En estos casos H_{coer} alcanza un máximo a una determinada temperatura para luego descender de forma notoria. A muy bajas temperaturas, H_{coer} vuelve a aumentar. Existen trabajos en los cuales se describe la dependencia del campo coercitivo en FePt, pero solo se discute el comportamiento de la fase ordenada $L1_0$. Tanto para nanopartículas [60] como para películas delgadas [61] se encuentra que H_{coer} decrece de forma continua cuando la temperatura aumenta, como es el caso usual en materiales ferromagnéticos. Existe un trabajo [62] que reporta un descenso anómalo del campo coercitivo por debajo de temperatura ambiente para películas delgadas de FePt en la fase $L1_0$ altamente texturadas, fabricadas sobre sustratos de MgO (100). Este descenso puede encontrarse en películas en las cuales las intensidades de los picos de difracción (200) y (002) son comparables, por lo que el efecto en H_{coer} fue finalmente explicado por medio de la interacción de intercambio entre cristales orientados con el eje fácil paralelo (granos con textura (200)) y perpendicular (granos con textura (002)) al plano de la película. A pesar de que la coercitividad en películas suele estar determinada por factores extrínsecos, tales como la densidad de centros de anclaje de paredes de dominio debido a defectos, cuando se estudia la dependencia en temperatura de H_{coer} en materiales ferromagnéticos en general pueden encontrarse dos tipos de comportamientos: tipo partícula o tipo película. En el primer caso las partículas se consideran que están aisladas y que en la energía necesaria para revertir

la magnetización deben tomarse en cuenta los efectos de origen térmico. La dependencia en temperatura toma la forma $H_{\text{coer}} = H_{c0} \left[1 - (T/T_B)^{1/2} \right]$, donde H_{c0} es la coercitividad a $T = 0$ K y T_B es la temperatura de bloqueo [30]. El otro caso límite se aplica para películas continuas donde las paredes de dominio se anclan por una red de inhomogeneidades distribuidas al azar [63]. Para paredes de dominio fuertemente ancladas en las inhomogeneidades (régimen conocido como “*strong pinning*” o anclaje fuerte), el campo coercitivo varía con la temperatura siguiendo la ley $H_{\text{coer}} = H_{c0} \left[1 - (T/T_S)^{2/3} \right]^2$. En el caso de anclaje débil (o “*weak pinning*”), la relación se vuelve lineal: $H_{\text{coer}} = H_{c0} [1 - (T/T_W)]$, donde T_S y T_W son las temperaturas características donde el anclaje desaparece. Veremos más adelante que la diferencia entre anclaje débil y fuerte está dada por la relación entre el tamaño de los defectos que actúan como centros de anclaje y el tamaño de la pared. Como puede esperarse de modelos térmicamente activados, donde la magnetización se revierte por efectos de la temperatura, se predice un descenso en H_{coer} a medida que la temperatura aumenta. Este comportamiento es el observado en la mayor parte de los materiales magnéticos. Los casos en los cuales la coercitividad aumenta con la temperatura (como lo que se observa en las películas con $35 \leq d \leq 56$ nm en la región $T \leq T_{\text{sp}}$, Fig. 3.3) son usualmente consecuencia de transformaciones de fase [64], sistemas acoplados de al menos dos fases [65] o debido a una competencia entre anisotropías magnéticas [62].

Como mencionamos anteriormente, en nuestras películas existe la competencia de dos anisotropías magnéticas, las cuales permiten la formación de una estructura en *stripes* (con un campo coercitivo relativamente mayor) por encima de cierto espesor crítico. Los resultados que se muestran en la Fig. 3.3, en la cual las películas con espesores entre $35 \text{ nm} \leq d \leq 56 \text{ nm}$ presentan un máximo en H_{coer} , sugieren que por encima de cierta temperatura crítica T_{sp} los dominios magnéticos pasan de ser planares a una configuración en *stripes*. Debido a que la temperatura de la transición no está bien definida (es decir, H_{coer} cambia de forma gradual) la definición de la temperatura de transición puede ser arbitraria. Supondremos que los *stripes* desaparecen cuando el campo coercitivo comienza a decrecer. Los valores de T_{sp} así obtenidos de la Fig. 3.3 se muestran en la Fig. 3.4 como símbolos llenos.

Modelo para la estimación del espesor crítico en función de la temperatura

La curva que predice el espesor crítico para la transición entre dominios magnéticos planares a *stripes* como función del factor de calidad Q ha sido deducida previamente por diferentes autores [33, 44, 45]. También se ha desarrollado un modelo simplificado del propuesto por Murayama [44] que es esencialmente unidimensional [33, 45]. En este se supone que el vector magnetización solo puede apuntar en un plano perpendicular a

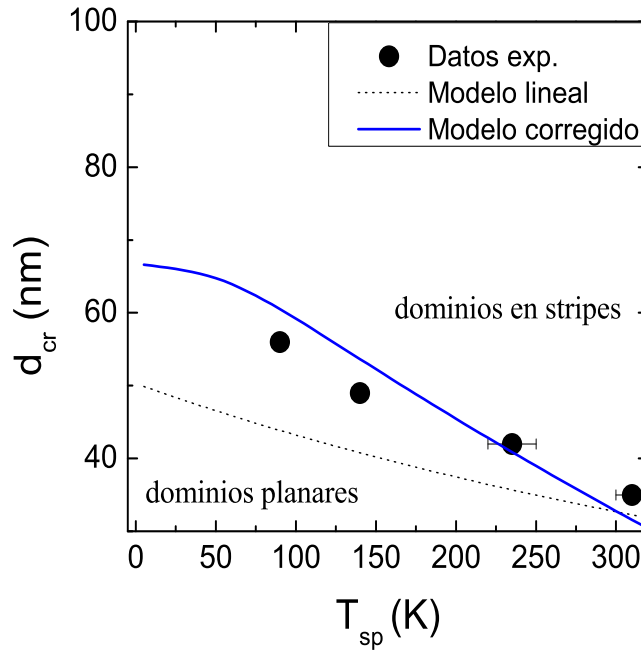


Figura 3.4: Diagrama de fases del espesor crítico en función de la temperatura que separa las regiones de dominios planares y en *stripes*. Mostramos las predicciones del modelo lineal Ec. 3.4 y el modelo en el cual también se toma en cuenta la dependencia en temperatura del coeficiente de magnetostricción λ , la deformación ε , el módulo de Young E_{FePt} y la magnetización de saturación M_s (ver modelo desarrollado a continuación).

la superficie de la película y que contiene la dirección de los *stripes*, alternando de forma gradual su componente fuera del plano con un período que aumenta a medida que se incrementa el espesor de la película (ver esquema en la Fig. 1.7). En la sección 1.3.2 de la introducción, se realizó un breve repaso de las diferencias entre estos modelos. Una forma de escribir esta dependencia de d_{cr} con Q es a través de las ecuaciones paramétricas Eqs. 1.16, presentadas en la sección 1.3.2.

$$Q = \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2} = \frac{1}{2\pi} [3x - (\pi + 3x)e^{-\pi/x}]$$

$$d_{cr} = l_e \frac{\sqrt{2}\pi^{3/2}}{x} [x - (\pi + x)e^{-\pi/x}]^{-1/2}.$$

Como se discute en el trabajo de Murayama [44], el modelo unidimensional en general predice valores mayores del espesor crítico que los medidos experimentalmente. Para obtener un mejor valor de d_{cr} como función de Q es necesario tomar en consideración un grado más de libertad. En el modelo unidimensional el vector magnetización puede variar dentro del espesor de la película, pero Murayama también considera que M puede tener una componente dentro del plano perpendicular a la dirección de los *stripes* (ver esquema de la Fig. 1.7 en la sección 1.3.2 de la Introducción). Esto hace que, desde el punto de vista matemático, el problema resulte considerablemente más difícil de resolver ya que no existe una solución analítica simple para esta situación.

La dependencia en temperatura de Q puede ser debida tanto a la variación de la anisotropía o bien de la magnetización M_s . Consideramos en primer lugar la contribución de K_\perp , suponiendo que la variación de la anisotropía proviene mayormente de la diferencia entre los coeficientes de expansión térmica entre la película de FePt y el sustrato de Si. En un modelo simple en el cual la tensión biaxial σ se encuentra dentro del plano de una muestra con una textura [111], la anisotropía perpendicular puede ser escrita como:

$$K_\perp = K_{\perp 0} - \frac{3}{2} \lambda_{111} \sigma, \quad (3.1)$$

donde $K_{\perp 0}$ es la anisotropía perpendicular inducida por tensiones residuales (y una posible contribución magnetocristalina debida a la textura [111]) a temperatura ambiente y λ_{111} es la constante de magnetostricción de saturación, a la cual, por comodidad en la notación, llamaremos λ de aquí en adelante. Esta constante ha sido reportada por Aboaf et al. [66] para películas de FePt en el estado desordenado, $\lambda = 70 \times 10^{-6}$, y más recientemente por Spada et al. [13], $\lambda = 34 \times 10^{-6}$. También existen valores reportados para películas de FePd por Shima et al. [41], $\lambda = 65 \times 10^{-6}$ y Wunderlich et al. [67] $\lambda = 250 \times 10^{-6}$ para películas fabricadas a $T = 423$ K. Más allá de las diferencias, en todos los casos la constante de magnetostricción reportada es positiva. en nuestro caso utilizamos un valor intermedio $\lambda_{111} = \lambda \sim 50 \times 10^{-6}$ y extrapolamos a bajas temperaturas asumiendo un comportamiento lineal. Hasta el momento, no hemos encontrado medidas directas de la magnetostricción en función de la temperatura para FePt, aunque sí existen datos para películas delgadas de FePd [68]. En este sistema $\lambda = 49 \times 10^{-6}$, 48×10^{-6} y 41×10^{-6} para $T = 4$, 77 y 300 K, respectivamente.

La dependencia en temperatura de tensiones biaxiales para una interfaz sustrato-película puede ser expresada como: [50, 51, 69]

$$\sigma(T) = \frac{\varepsilon(T) E_{\text{FePt}}(T)}{1 - \nu(T)} \simeq \frac{(\alpha_s(T_0) - \alpha_f(T_0)) (T - T_0) E_{\text{FePt}}(T_0)}{1 - \nu(T_0)}, \quad (3.2)$$

donde ε es la deformación, E el módulo de Young, α_s y α_f los coeficientes de expansión térmica del sustrato y la película, respectivamente, y ν el coeficiente de Poisson. Esta expresión es válida para una película tensionada uniformemente, en donde se suponen despreciables los efectos de relajación en los bordes de grano, y nos da un límite superior para la deformación. El comportamiento lineal en temperatura de la expresión 3.2 es válido en un rango de temperaturas limitado alrededor de $T_0 = T_{\text{amb}}$ en el cual las variables α_s , α_f , E y ν tienen una dependencia en temperatura relativamente pequeña. Aún así, es sabido que la variación de los coeficientes de expansión térmica y E es apreciable si el rango de temperatura es grande. Si se supone la misma dependencia para los coeficientes de expansión térmica que para el calor específico de los fonones en

el modelo de Einstein, la deformación en función de T está dada por:

$$\begin{aligned}\varepsilon(T) &= \int_{T_0}^T (\alpha_s(T) - \alpha_f(T)) dT = \int_{T_0}^T \left(\alpha_0^{Si} \left(\frac{\theta_E^{Si}}{2T} \right)^2 \frac{1}{\sinh^2\left(\frac{\theta_E^{Si}}{2T}\right)} - \alpha_0^{\text{FePt}} \left(\frac{\theta_E^{\text{FePt}}}{2T} \right)^2 \frac{1}{\sinh^2\left(\frac{\theta_E^{\text{FePt}}}{2T}\right)} \right) dT \\ &= \alpha_0^{Si} \theta_E^{Si} \left(\coth \frac{\theta_E^{Si}}{2T} - \coth \frac{\theta_E^{Si}}{2T_0} \right) - \alpha_0^{\text{FePt}} \theta_E^{\text{FePt}} \left(\coth \frac{\theta_E^{\text{FePt}}}{2T} - \coth \frac{\theta_E^{\text{FePt}}}{2T_0} \right).\end{aligned}\quad (3.3)$$

Si usamos los valores ya reportados [70] para los coeficientes de expansión térmica a temperaturas cercanas a ambiente para sustratos de silicio [100], $\alpha_s = 2.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, y para películas de FePt, $\alpha_f = 10.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, encontramos que $\alpha_0^{Si} = 3.2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ y $\alpha_0^{\text{FePt}} = 11.05 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. Las temperaturas de Einstein θ_E^{Si} y θ_E^{FePt} pueden ser obtenidas de las temperaturas de Debye de Si ($\theta_D = 645 \text{ K}$), Fe ($\theta_D = 470 \text{ K}$) y Pt ($\theta_D = 240 \text{ K}$) usando la relación $\theta_E/\theta_D \sim (\pi/6)^{1/3}$. Para el FePt no hay valores reportados de θ_D , por lo que recurrimos a un modelo simple que nos permite estimar la temperatura de Debye de una aleación a través de los valores de θ_D de los elementos que lo componen y la concentración relativa, [71] $\frac{1}{(\theta_D^{\text{FePt}})^3} = \frac{x}{(\theta_D^{\text{Fe}})^3} + \frac{1-x}{(\theta_D^{\text{Pt}})^3}$. Con estas aproximaciones ahora es posible estimar $\theta_E^{Si} = 522 \text{ K}$ and $\theta_E^{\text{FePt}} = 235 \text{ K}$.

El módulo de Young del FePt a temperatura ambiente en su fase desordenada, $E_{\text{FePt}} = 180 \text{ GPa}$, ha sido reportado por dos autores [26, 70]. Sin embargo, en ninguno de estos trabajos se menciona la forma en la cual se ha calculado este valor. Mediciones anteriores [72] para FePt en la fase ordenada resulta en $E_{\text{FePt}} = 150 \text{ GPa}$. Usando la técnica de lámina vibrante realizamos mediciones de una pequeña muestra que realizamos a partir de un trozo de material que cortamos del blanco que utilizamos para depositar las películas por *sputtering*, resultando $E_{\text{FePt}} = 165(10) \text{ GPa}$ (Ver Apéndice). Sin embargo, los datos de difracción de rayos-X y magnetización nos indican que el blanco se encuentra, al menos parcialmente, en la fase cristalina $L1_0$. En FePd, el módulo de Young en la fase desordenada toma un valor aproximadamente 20% menor que en la fase ordenada [73], lo que trasladado a nuestras muestras resulta en $E_{\text{FePt}} = 130 \text{ GPa}$ a temperatura ambiente. En ese mismo trabajo ha sido reportado que las constantes elásticas aumentan $\sim 10\%$ a 4 K (relativo a T_{amb}) y nuestras propias medidas también muestran un aumento de $\sim 6\%$ para E_{FePt} a 100 K, relativo a $T = 300 \text{ K}$. Para tomar en consideración la variación en temperatura del módulo de Young, usamos la expresión empírica $E_{\text{FePt}}(T)[\text{GPa}] = 142 - T[\text{K}]/25$.

El valor aceptado para el coeficiente de Poisson en FePt [13, 26, 70] es $\nu = 0.33$, que supondremos independiente de la temperatura. Usando las Ecs. 3.1, 3.2 y 3.3 es posible calcular la dependencia en temperatura de Q considerando solo la aproximación lineal

para la deformación:

$$Q(T) \simeq \frac{K_{\perp 0} - \frac{3}{2}\lambda(\alpha_s - \alpha_f)(T - T_0) E_{\text{FePt}}/(1 - \nu)}{2\pi M_s^2}, \quad (3.4)$$

o la dependencia en temperatura de todas las variables:

$$Q(T) \simeq \frac{K_{\perp 0} - \frac{3}{2}\lambda(T) \varepsilon(T) E_{\text{FePt}}(T)/(1 - \nu)}{2\pi M_s^2(T)}. \quad (3.5)$$

En la Ec. 3.5 el término dominante es la dependencia cuadrática de $M_s(T)$ en el denominador. Esta dependencia fue medida experimentalmente en la película de 94 nm y fue luego ajustada con una función polinomial. Utilizamos para $K_{\perp 0} = 1.5(4) \times 10^6$ erg/cm³ [18].

Una vez determinada la dependencia $Q(T)$, podemos usar la Ec. 1.16 para construir el diagrama de fases que presentamos en la Fig. 3.4. En la misma figura, incluimos el modelo que llamamos lineal de la Ec. 3.4, en el cual solo se consideró la dependencia lineal de las tensiones con la temperatura. Como esperábamos, el acuerdo con las medidas experimentales es mucho mejor cuando se toma en consideración la dependencia con la temperatura de todas las variables. Es interesante notar que el modelo corregido no predice ninguna transición en la muestra con $d = 94$ nm, y para $d \leq 28$ nm se espera que T_{sp} sea mayor que la temperatura ambiente. Usando las Ecs. 1.16 y 3.5 puede estimarse $T_{\text{sp}} \gtrsim 340$ K para $d = 28$ nm y $T_{\text{sp}} \gtrsim 420$ K para $d = 19$ nm. Lamentablemente, no es posible realizar mediciones a temperaturas mayores a ambiente ya que las muestras sufren cambios irreversibles al ciclarlas térmicamente a temperaturas mayores a 300 K, como se puede observar en el Apéndice a partir de experimentos de lámina vibrante.

3.2.2. Medidas de remanencia y viscosidad magnética

Fenomenología para la interpretación de resultados experimentales

El estudio de las interacciones magnéticas presentes en películas en las cuales se observa una transición de una estructura de dominios planar a *stripes* puede ayudar en la comprensión de este fenómeno. Para estimar el signo de las interacciones predominantes en este tipo de sistemas, suelen usarse gráficos de Henkel [74] y curvas delta-M (δM) [75, 76], junto con mediciones del parámetro de viscosidad S [77, 78].

Se define la curva δM como la diferencia entre las curvas de remanencia:

$$\delta M = 2M_r - M_{\text{rem}}^s - M_d, \quad (3.6)$$

donde M_{rem}^s es el valor de la remanencia cuando la muestra se encuentra inicialmente

en el estado saturado y la curva M_r (también conocida como magnetización remanente isotérmica, o curva IRM por sus siglas en inglés) es medida partiendo de un estado completamente desmagnetizado¹, midiendo sucesivamente la magnetización a campo cero luego de aplicar campos crecientes en magnitud. Para obtener una curva M_d (desmagnetización DC, o curva DCD por sus siglas en inglés) se parte de un estado saturado en un campo negativo y luego se procede de la misma forma que para la medición de M_r . En general, estas curvas son normalizadas por la remanencia en saturación M_{rem}^s y se las llama m_r y m_d .

En el caso de un sistema libre de interacciones el modelo de Wohlfarth [78] predice que las curvas de remanencia m_d y $1 - 2m_r$ deberían ser coincidentes, por lo que $\delta M = 0$. Si $\delta M \neq 0$ los efectos de las interacciones pueden ser tenidos en cuenta usando un modelo fenomenológico [79] en función de un campo efectivo de interacción, h_{int} , que toma en consideración interacciones tipo dipolar (desmagnetizantes) y de intercambio (magnetizantes). En este modelo:

$$h_{\text{int}} = \alpha_i m + \beta (1 - m^2), \quad (3.7)$$

donde α_i y β son parámetros de ajuste del modelo.

De la Ec. 3.7 se deduce que para valores pequeños de β el campo de interacción tiene una dependencia lineal con m , con una pendiente de magnitud α_i . Este parámetro puede ser positivo o negativo dependiendo del tipo dominante de interacciones, de intercambio o dipolar, respectivamente. El segundo término de la Ec. 3.7 toma en consideración fluctuaciones en el campo de interacción. Los parámetros α_i y β pueden obtenerse de los datos experimentales a través de la expresión [80]:

$$\alpha_i = \int_0^\infty \delta M dh, \quad \beta = \frac{\alpha_i}{(3m_r^0 - 1)}, \quad (3.8)$$

donde m_r^0 es la magnetización de remanencia en el punto donde la curva δM cruza el cero (se define $\beta = 0$ si la curva δM no cambia de signo) y h es el campo aplicado H normalizado al campo H_C^{rem} , llamado campo reducido. Este último se define como el campo positivo que, después de haber saturado la muestra en dirección negativa, produce una magnetización de remanencia nula a campo cero.

Las mediciones de remanencia usualmente son complementadas con experimentos de relajación magnética. Cuando una muestra es magnetizada en un campo de saturación negativo para luego ser sometida a un campo positivo, la magnitud de M usualmente varía de forma lineal con el logaritmo del tiempo t . A la constante de proporcionalidad se la llama viscosidad magnética S y la relación entre ambos se la escribe como: [81]

¹Este estado se consigue siguiendo un protocolo bien definido, ya que, como se verá más adelante, el resultado final puede depender de la forma en que se desmagnetiza la película.

$$M(t, H) = M(t_0, H) + S(H) \ln \left(\frac{t}{t_0} \right), \quad (3.9)$$

siendo t_0 el tiempo inicial y $M(t_0, H)$ el valor inicial de M a $t = t_0$ para un dado campo H . La viscosidad puede depender de la temperatura T , la magnetización de saturación M_s y la función de distribución de energías de activación $f(\mathbf{E}_A)$, dependiente el campo H , de la siguiente manera:

$$S = 2M_s k_B T f(\mathbf{E}_A). \quad (3.10)$$

Las medidas de viscosidad y remanencia pueden ser relacionadas usando la derivada de la curva DCD, conocida como la susceptibilidad irreversible [82]:

$$\chi_{\text{irr}} = \frac{\partial M_d}{\partial H} = -2M_s f(\mathbf{E}_A) \left(\frac{d\mathbf{E}_A}{dH} \right). \quad (3.11)$$

La variación de la energía de activación con el campo magnético puede ser relacionada con el llamado volumen de activación, $\left| \frac{d\mathbf{E}_A}{dH} \right| = cV_{\text{ac}}M_s$, donde c es una constante, generalmente del orden de la unidad. Es posible calcular su valor [82], resultando $c = 1$ para sistemas monodominio o con paredes de dominio fuertemente ancladas y $c = 2$ para sistemas con anclaje débil. Usando las Ecs. 3.10 y 3.11, podemos escribir el volumen de activación como:

$$V_{\text{ac}} = \frac{k_B T \chi_{\text{irr}}}{cM_s S}. \quad (3.12)$$

Para el caso de películas delgadas en las cuales la magnetización se revierte por el movimiento de las paredes de dominio, el volumen de activación puede ser interpretado como el volumen barrido por un solo salto de la pared entre centros de anclaje. A este volumen se lo relaciona usualmente con el campo de fluctuaciones H_f , definido como [83]:

$$H_f = \frac{S}{\chi_{\text{irr}}} = -\frac{k_B T}{d\mathbf{E}/dH} = \frac{k_B T}{cM_s} \frac{1}{V_{\text{ac}}}. \quad (3.13)$$

Mediciones de remanencia IRM y DCD

Para las mediciones DCD usamos la siguiente secuencia de campos: $(-H_{\text{sat}}, \Delta H, 0)$; $(-H_{\text{sat}}, 2\Delta H, 0)$; ...; $(-H_{\text{sat}}, n\Delta H, 0)$; ... (Fig. 3.5 (a)). En este caso se aplicó un campo de saturación negativo antes de aplicar un campo positivo $H = n\Delta H$ para finalmente tomar el punto de medición en $H = 0$. En la mayoría de los casos usamos $H_{\text{sat}} = 5000$ Oe y $\Delta H \leq 10$ Oe, dependiendo del campo coercitivo de la muestra. Las curvas IRM fueron obtenidas partiendo de un estado desmagnetizado y midiendo la magnetización a campo cero siguiendo la secuencia: $(\Delta H, 0)$; $(2\Delta H, 0)$; ... (Fig. 3.5 (b)). En la Fig.

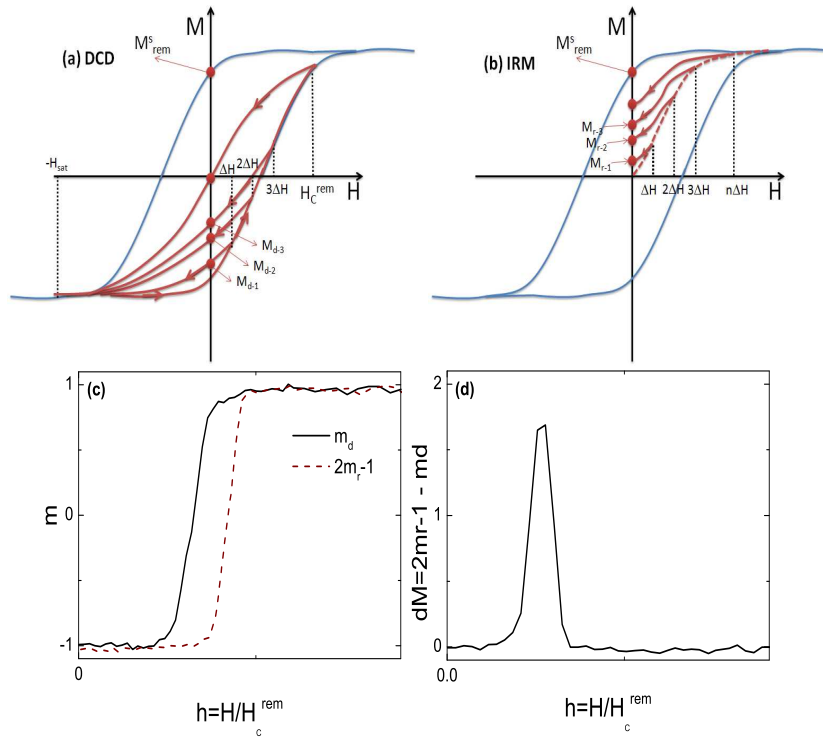


Figura 3.5: Esquema de los protocolos de medición para la magnetización de remanencia siguiendo los protocolos DCD (a) e IRM (b). Los puntos resaltados sobre el eje de la magnetización indican la medida de M a campo cero. De las mediciones DCD (a) y IRM (b) se obtienen M_d y M_r que luego son normalizados por M_{rem}^s , resultando en m_d y m_r . En el panel (c) se muestra el gráfico de m_d y $2m_r - 1$. En (d) se muestra la curva δM , calculada como la diferencia entre las mediciones en (c). Notar que en el caso de un sistema sin interacciones, las curvas m_d y $2m_r - 1$ coinciden y $\delta M = 0$.

3.5 se esquematiza el protocolo de medición para una curva DCD (a) e IRM (b), junto con una medida de una curva típica para ambos protocolos (c) y la curva δM (d) que resulta de la resta de ambas mediciones.

Idealmente, el estado desmagnetizado se alcanza calentando la muestra por encima de la temperatura de Curie, T_C , para luego volver a enfriarla libre de campo externo. Debido a efectos irreversibles, tales como un cambio en la fase cristalográfica del material (esta irreversibilidad resulta clara en el experimento de lámina vibrante, detallado en el Apéndice A), no es posible calentar nuestras muestras a $T_C \sim 500$ K, por lo que adoptamos dos protocolos para el proceso de desmagnetización. El primer método y el más usualmente utilizado, al cual llamamos “lineal”, consiste en saturar a la muestra en una dirección para luego aplicar un campo menor en sentido contrario, hasta llegar a campo nulo. Otra forma de desmagnetizar películas delgadas es en un campo externo decreciente, mientras se rota la muestra de forma rápida sobre un eje perpendicular a la dirección del campo. Este método, al que llamamos “rotante”, suele dar como resultado un estado más desordenado dentro del plano de

la muestra, parecido al que se obtiene por desmagnetización térmica.

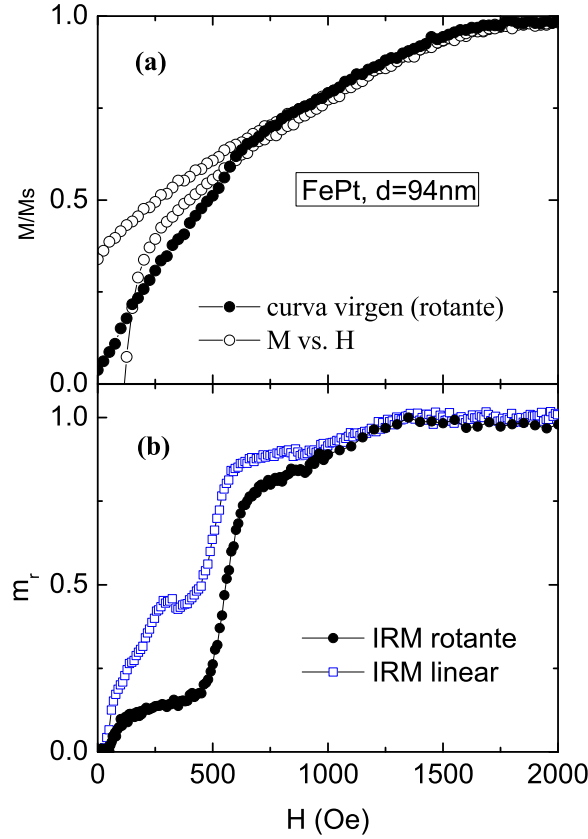


Figura 3.6: (a) Cuadrante superior derecho del lazo de histéresis normalizado para la muestra con $d = 94$ nm. La curva virgen fue medida luego de desmagnetizar la película con el método rotante. Notar que en un cierto rango de campo, la curva virgen se encuentra por fuera del lazo de histéresis. (b) Curvas IRM normalizadas medidas luego de ser desmagnetizadas por los métodos rotante y lineal.

Para las medidas de relajación magnética, las películas fueron saturadas en un campo negativo de 5000 Oe, luego se aplicó un campo positivo que se mantiene constante a lo largo de la duración del experimento, mientras que la magnetización se mide a intervalos regulares de 10 s por aproximadamente 30 min. La misma rutina fue repetida para distintos campos aplicados, todos cercanos a H_{coer} .

En la Fig. 3.6(a) se muestra el cuadrante superior derecho de un lazo de histéresis para la película $d = 94$ nm junto con la curva virgen obtenida después de haber desmagnetizado la película usando el método rotante. Puede observarse que existe una región de campo donde la curva virgen no se encuentra dentro del lazo de histéresis. Este efecto no ocurre cuando usamos el método de desmagnetización lineal. Para explicarlo se debe considerar que el estado remanente luego de la rutina de desmagnetización rotante consiste en un arreglo de *stripes* orientados de forma aleatoria dentro del plano. Por otro lado, si usamos el método lineal, los *stripes* en la remanencia permanecen alineados en la dirección del campo desmagnetizante. Se ha

observado que, luego de saturar una película con $d \geq d_{cr}$, la estructura de *stripes* mantiene esencialmente la dirección paralela a la del campo aplicado. A la capacidad de rotar rígidamente los *stripes* mediante la aplicación de un campo magnético externo se la conoce como anisotropía rotacional. Cuando la muestra está saturada, la anisotropía rotacional impone un eje de fácil magnetización en la dirección del campo y los *stripes* continuarán alineados en esa dirección a menos que una componente perpendicular del campo sea lo suficientemente intensa como para rotarlos.

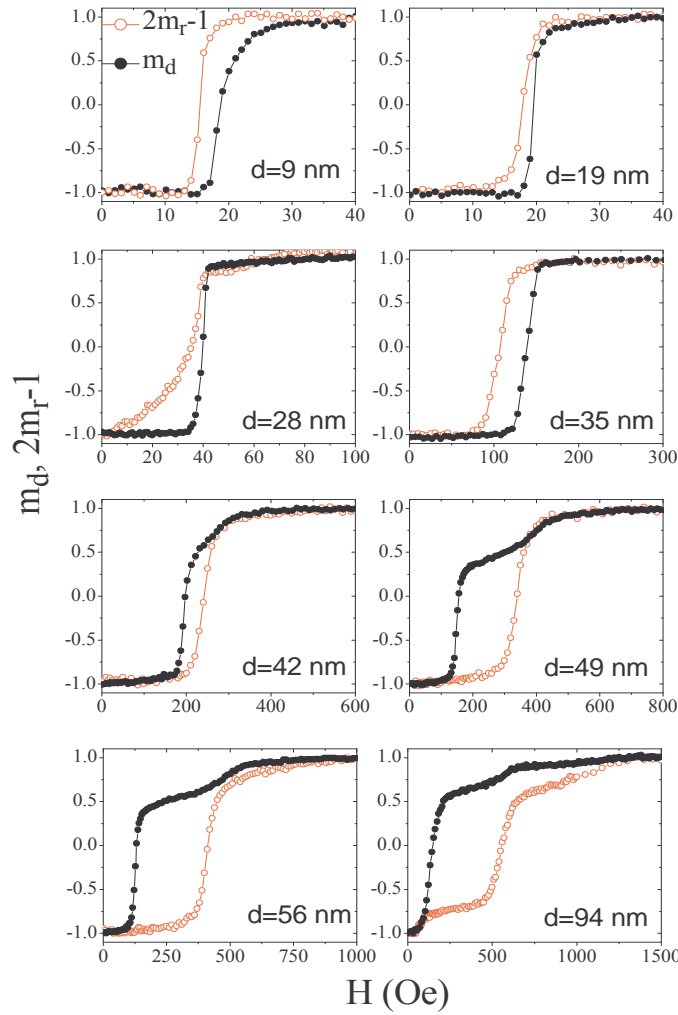


Figura 3.7: Curvas de remanencia IRM y DCD normalizadas. En todos los casos, la curva IRM se midió luego de haber desmagnetizado la muestra con el método rotante.

Las mismas diferencias se observan en la curvas IRM (Fig. 3.6(b)). Cuando el estado inicial es isotrópico y desordenado (método rotante de desmagnetización) es más difícil magnetizar la muestra en la dirección del campo aplicado. Para entender esto, es necesario comprender cómo es el proceso de magnetización. Focalizando la atención en la curva IRM rotante de la Fig. 3.6 (b), encontramos para la muestra de espesor $d = 94$ nm un crecimiento relativamente rápido en la remanencia m_r (desde

$m_r = 0$ hasta $m_r \sim 0.10$) en la región de campo bajos $H \lesssim H_{\text{coer}} \sim 125$ Oe, que asociamos al movimiento en las paredes de dominio en las zonas donde la magnetización se encuentra en la misma dirección del campo aplicado. Luego, m_r se mantiene aproximadamente constante hasta $H \sim 500$ Oe, coincidente de forma aproximada con el pequeño salto en la curva virgen en el comienzo de la región reversible del lazo de histéresis (Fig. 3.6(a)). El hecho de que la curva virgen se encuentre por fuera de la curva de histéresis cuando utilizamos el método rotante (es decir, que cueste más magnetizar la muestra) se encuentra asociado al campo de anisotropía rotacional, H_{rot} , que es el campo necesario para rotar el eje de fácil magnetización dentro del plano en la dirección del campo aplicado. Una vez que los *stripes* se encuentran alineados, es más fácil moverlos a través del desplazamiento de paredes de dominio y se puede notar un incremento apreciable en m_r (desde $m_r = 0.15$ a $m_r = 0.75$) en el rango $H = 500 - 650$ Oe. El campo de rotación se define como el campo por sobre el cual la curva de histéresis se vuelve reversible, los valores de H_{rot} en función del espesor fueron obtenidos de mediciones previas [18] y se muestran en la Fig. 3.8. En la figura es claro que el valor de $H_{\text{rot}} \sim 0$ para las muestras más delgadas y luego se incrementa de forma considerable a medida que aumenta el espesor y $d > d_{\text{cr}}$.

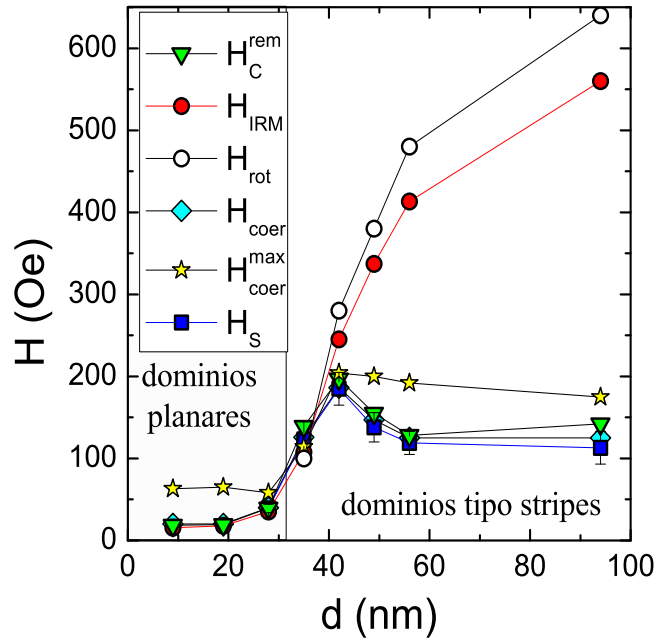


Figura 3.8: Campos de remanencia a temperatura ambiente H_C^{rem} y H_{IRM} obtenidos de las curvas m_d y $2m_r - 1$, respectivamente. También se graficaron el campo coercitivo H_{coer} y el campo donde ocurre el máximo en la viscosidad magnética H_S , discutido más adelante en el texto. Los valores de H_{rot} se extrajeron de la Ref. [18] y H_C^{max} es el máximo valor del campo coercitivo en el rango de temperaturas 4-300 K (sección 3.2.1).

Por otra parte, si observamos la curva IRM desmagnetizada de forma lineal

podemos encontrar características similares, pero los cambios irreversibles a bajos campos (cerca de H_{coer}) son considerablemente más grandes alcanzando m_r un 50 % de su valor de saturación. A campos más altos se observa un crecimiento primero rápido y luego gradual, hasta alcanzar la magnetización remanente de saturación, con el mismo comportamiento general ya descrito anteriormente para la curva tomada a partir del método rotante de desmagnetización. En el resto de las muestras también podemos encontrar diferencias entre ambas curvas IRM, pero desaparecen a medida que las películas se vuelven más delgadas. Para $d < 35$ nm, donde ya no hay *stripes* a T_{amb} , las curvas medidas con ambos métodos son coincidentes.

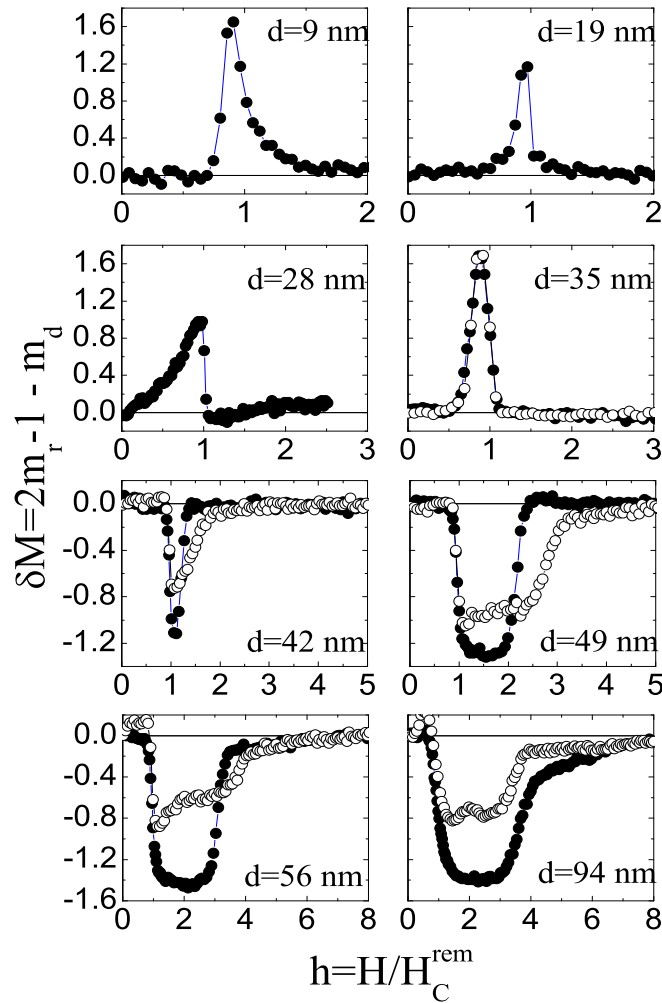


Figura 3.9: Gráficos δM para todas las películas en estudio. Estas curvas muestran la desviación del comportamiento de un sistema Stoner-Wohlfarth. Para $d \geq d_{\text{cr}}$, se presentan las curvas que se obtienen usando el método de desmagnetización rotante (símbolos llenos) y lineal (símbolos vacíos) para la medida IRM.

En la Fig. 3.7 presentamos las curvas normalizadas IRM (estado inicial desmagnetizado con el método rotante de desmagnetización) y DCD para todas las

muestras. Graficamos m_d y $2m_r - 1$ para comparar ambas medidas. Es importante notar que para $d \leq 35$ nm la curva IRM se encuentra por encima de la DCD, invirtiéndose esta relación para $d \geq 42$ nm. Como puede deducirse de la Ec. 3.6, esto implica una inversión en el signo de δM , indicando a su vez un cambio en el tipo de interacciones dominante. El hecho de que $2m_r - 1 > m_d$ para las películas más delgadas es señal de que es más fácil llegar al estado de saturación si se parte de un estado desordenado, por lo que puede deducirse que las interacciones favorecen un estado magnetizado. En las muestras más gruesas la curva IRM está siempre por debajo de la curva DCD, implicando que dominan las interacciones del tipo dipolar.

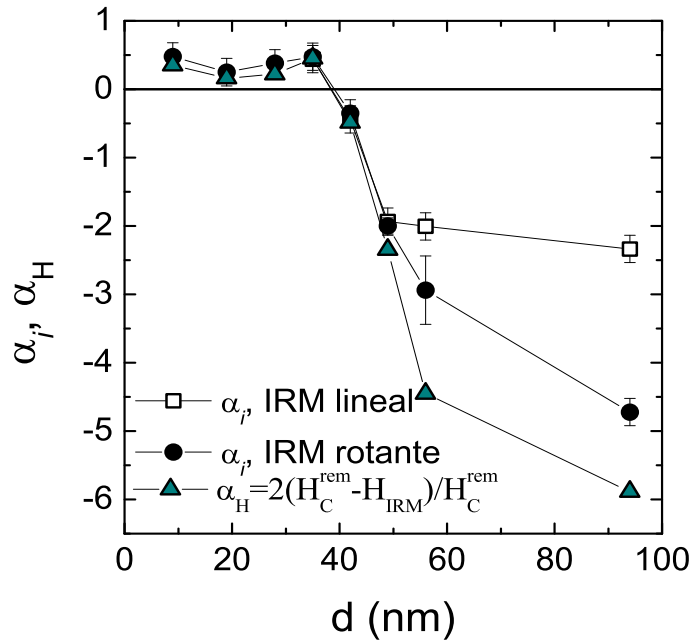


Figura 3.10: Parámetro de interacción α_i , obtenido a través de la integral de las curvas δM , en función del espesor de las películas. Los círculos vacíos corresponden al uso del método lineal de desmagnetización para la medida IRM, indicando un estado inicial más isotrópico, mientras que los símbolos llenos corresponden al método de desmagnetización rotante. Como comparación, también se agregó el parámetro α_H , encontrándose valores similares a α_i en casi todas las muestras.

Del campo donde las curvas m_d y $2m_r - 1$ cruzan el cero puede obtenerse el campo coercitivo de remanencia H_C^{rem} y de reversión H_{IRM} , respectivamente. En la Fig. 3.8 hemos graficado H_C^{rem} y H_{IRM} , junto al coercitivo H_{coer} y el campo de anisotropía rotacional H_{rot} . Para un sistema de Stoner-Wohlfarth, ambos campos de remanencia deberían tomar el mismo valor que el coercitivo. Como se muestra en la Fig. 3.8, H_{coer} es relativamente pequeño para las muestras más delgadas $H_{\text{coer}} \sim 20$ Oe, aumenta considerablemente para $d > d_{\text{cr}}$, llega a un máximo para $d = 42$ nm ($H_{\text{coer}} \sim 140$ Oe) y luego decrece lentamente para espesores mayores. El comportamiento descrito es seguido por H_C^{rem} , aunque mantiene valores mayores que H_{coer} . Este no es el caso de

H_{IRM} , que crece de forma continua con el espesor, otro indicativo del cambio en el tipo de interacciones magnéticas cuando se forman los *stripes*.

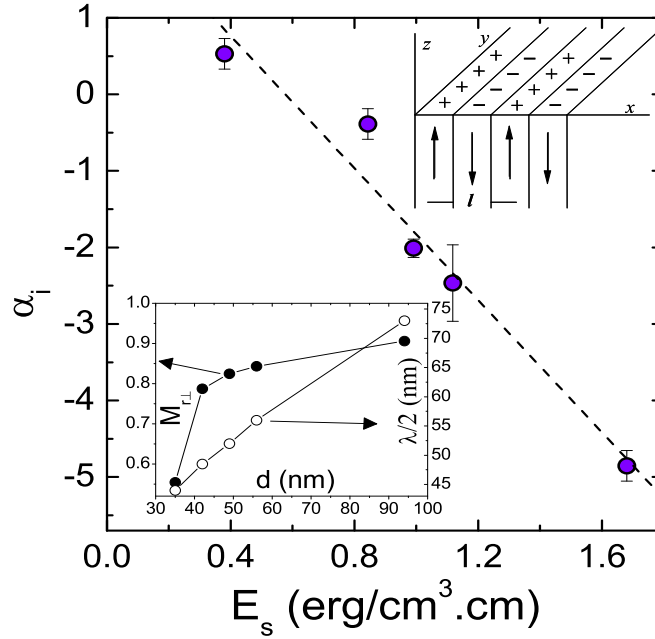


Figura 3.11: Dependencia del parámetro de interacción α_i (obtenido usando el método de desmagnetización rotante) con la energía magnetostática, calculada bajo la suposición de una configuración de dominios como el que se muestra en el esquema. También se agregó la dependencia con el espesor de la magnetización de remanencia perpendicular $M_{r\perp}$ y el semiperíodo de los *stripes* $\lambda_s/2$.

Como ya mencionamos, una forma de caracterizar de forma cualitativa las interacciones magnéticas, es a través de las curvas δM (Ec. 3.6), las cuales reflejan la desviación del comportamiento esperado para un sistema de Stoner-Wholfarth, donde no hay interacciones. En la Fig. 3.9 mostramos los gráficos δM para todas las películas estudiadas en función del campo reducido h ($h = H/H_C^{\text{rem}}$). Estos resultados indican nuevamente que las interacciones dominantes cambian de magnetizantes a desmagnetizantes cuando se comienza a formar la estructura en *stripes* en $d \sim 35$ nm.

Usando la Ec. 3.8 puede hacerse una estimación de la intensidad de las interacciones magnéticas, evaluando el parámetro α_i del modelo de Che y Bertram [79, 80]. En la Fig. 3.10 se presenta la integral de los gráficos δM como función de d , incluyéndose los valores de las integrales para ambas rutinas de desmagnetización. Agregamos en la misma figura $\alpha_H = \frac{2(H_C^{\text{rem}} - H_{\text{IRM}})}{H_C^{\text{rem}}}$, que también puede ser usado para estimar las interacciones magnéticas ya que para curvas IRM y DCD perfectamente “cuadradas” se cumple $\alpha_H = \alpha_i$.

Un análisis dimensional elemental de la Ec. 3.8 revela que el parámetro de interacción α_i puede ser asociado a una energía magnética normalizada, por lo que podría ser correlacionado con el tipo de contribución a la energía de la configuración

de dominios magnéticos. Si suponemos que los *stripes* consisten en bloques de sección rectangular, paralelos entre sí y magnetizados en dirección perpendicular al plano (ver esquema en la Fig. 3.11) es posible calcular [84] la energía magnetoestática por unidad de superficie $\mathbf{E}_S[\text{erg/cm}^2] = 0.374 M_{\perp}^2 l$, donde M_{\perp} y l deben estar en unidades emu y cm, respectivamente. Esta energía puede ser estimada para todas las películas con dominios tipo *stripes*, asociando el ancho de los bloques l , al semiperíodo $\lambda_s/2$, y estimando la componente de la magnetización perpendicular al plano a través de la relación $\frac{M_{\perp}(d)}{M_s} = \frac{M_{r\perp}(d)}{M_s} \sim \sqrt{1 - \left[\frac{M_{r\parallel}(d)}{M_{r\parallel}(d=28)} \right]^2}$. La dependencia de $\lambda_s/2$ y $M_{r\perp}$ con el espesor fue obtenida de medidas previas [18] y se muestra en el recuadro de la Fig. 3.11.

En la Fig. 3.11 graficamos el parámetro de interacción α_i como función de \mathbf{E}_S para $d \geq 35$ nm y encontramos que hay una marcada correlación lineal entre ambas magnitudes. Esto indica que para películas por encima del espesor crítico se forman *stripes* para minimizar la contribución magnetostática, la cual es más importante cuanto mayor es d . En la Fig. 3.10 se puede ver como α_i disminuye (se hace más negativo) cuanto mayor es d .

Mediciones de viscosidad magnética

También realizamos mediciones de viscosidad magnética para todas las muestras. Para las películas con espesores $d \geq 28$ nm encontramos que la Ec. 3.9 predice el comportamiento experimental (Fig. 3.12(a)). Este no es el caso para las películas más delgadas de $d = 9$ y 19 nm, en las que la magnetización no sigue un comportamiento logarítmico y decae en saltos discretos (Fig. 3.12(b)). Esto último solo ha sido encontrado para un campo determinado cercano al coercitivo e indica una distribución angosta de barreras de energía en las películas más delgadas. Para las medidas de relajación de las muestras con espesores $d = 9$ y 19 nm se toma un punto de medición cada 0.2 Oe, valor que se encuentra muy cercano al líte de estabilidad del equipo (0.1 Oe). Esto hace que sea difícil concluir que la reversión de la magnetización se deba solo a efectos térmicos.

Graficamos en la Fig. 3.13 el parámetro de viscosidad, obtenido de las pendientes de las curvas M vs. $\ln t$ (similares a la presentada en la Fig. 3.12(a)) para todas las muestras con $d \geq 28$ nm, en función del campo aplicado y ajustamos los datos utilizando una gaussiana. En todos los casos observamos que la constante de viscosidad alcanza un máximo, al que llamamos $S_{\text{máx}}$, en el campo H_S , cercano pero más pequeño que H_{coer} (Fig. 3.8). La distribución de valores alrededor de $S_{\text{máx}}$ tiene un ancho a altura mitad (FWHM, por sus siglas en inglés “*Full Width at Half Maximum*”) caracterizado por ΔH_S , el cual es angosto para $d = 28$ nm ($\Delta H_S \sim 3$ Oe), luego aumenta a un valor promedio de $\Delta H_S \sim 20$ Oe para $35 \leq d \leq 56$ nm, para

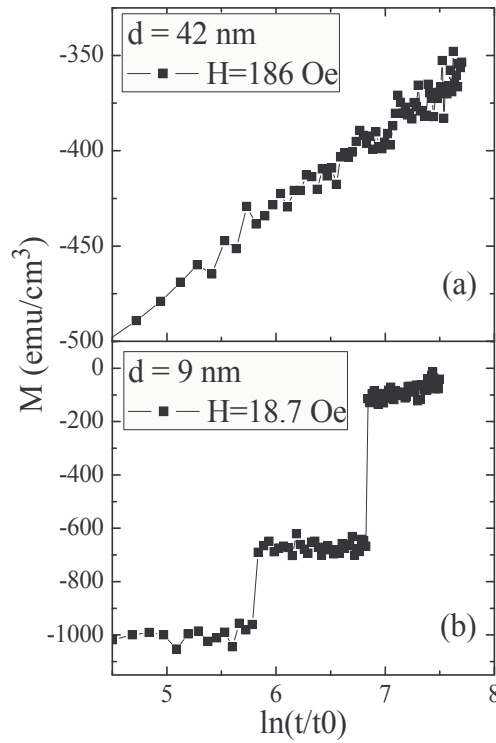


Figura 3.12: Medidas de relajación magnética de dos películas con espesores (a) $d = 42$ nm $> d_{cr}$, la cual presenta un comportamiento casi lineal con el logaritmo del tiempo y (b) $d = 9$ nm $< d_{cr}$, con una relajación en forma de saltos discretos.

finalmente crecer hasta $\Delta H_S \sim 60$ Oe para $d = 94$ nm. Como se discutió previamente al comienzo de la sección, la dependencia en campo de S es una medida de la distribución de barreras de energía (Ec. 3.10) y se debe poder correlacionar con la susceptibilidad irreversible obtenida de la derivada de las curvas DCD.

En la Fig. 3.14 (a) presentamos la dependencia de $S_{m\acute{a}x}$ y $\chi_{irr}^{m\acute{a}x}$ con el espesor de la película, obtenidas de las Figs. 3.13 y 3.7 respectivamente, y en (b) el ancho a altura mitad FWHM de la distribución en campo de ambas magnitudes. Como se esperaba, se encuentra el mismo comportamiento general entre $S_{m\acute{a}x}$ y $\chi_{irr}^{m\acute{a}x}$, con la excepción de $d = 28$ nm. Pero, como ya hemos comentado, esta muestra se encuentra en el límite del comportamiento lineal de M vs. $\ln t$ (Fig. 3.13) y presenta una distribución muy angosta, lo que dificulta la determinación de $S_{m\acute{a}x}$. Puede ser posible, entonces, que el valor real en este caso sea mucho mayor del que pudimos estimar. También se observa que $S_{m\acute{a}x}$ decrece a medida que aumenta el espesor, indicando que la relajación magnética para películas más delgadas es más rápida. En la Fig. 3.14 (b) las distribuciones en campo ΔH_S y $\Delta H_{\chi_{irr}}$ tienen la misma dependencia con el espesor, como se esperaba de las Ecs. 3.10 y 3.11, indicando que la distribución de energías de activación $f(\mathbf{E}_A)$ tiende a ser más estrecha para películas más delgadas. Algunos autores [85] han propuesto que una distribución angosta de $f(\mathbf{E}_A)$ es una indicación

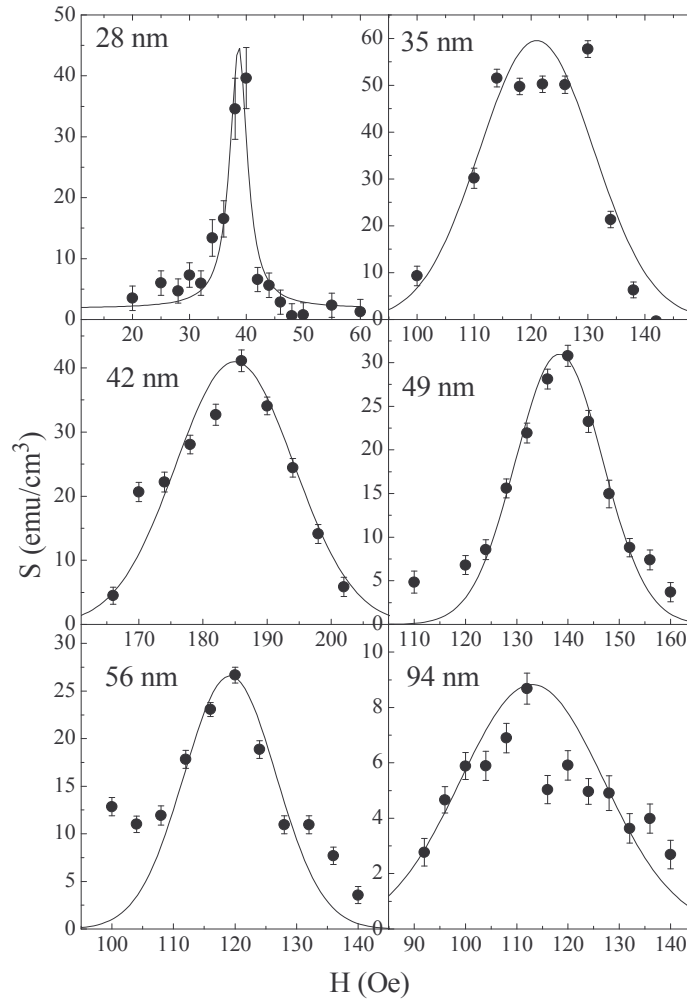


Figura 3.13: Viscosidad magnética S en función del campo para las muestras en las que se observa una variación aproximadamente lineal de la magnetización con $\ln(t/t_0)$. Los datos fueron ajustados con una distribución gaussiana, de la cual se extrajeron los parámetros $S_{\text{máx}}$, H_S y ΔH_S .

de fuerte acople de intercambio entre granos, consistente con los resultados obtenidos a partir de las medidas de δM .

Volumen de activación y campo de fluctuaciones

El volumen de activación puede ser calculado a partir de la Ec. 3.12 evaluando el cociente entre los valores máximos $S_{\text{máx}}$ y $\chi_{\text{irr}}^{\text{máx}}$, o bien promediando valores diferentes de $V_{\text{ac}}(H)$ cercanos al campo coercitivo. Para ello, también es necesario estimar el parámetro c de la Ec. 3.12. Para un sistema en el cual la reversión de la magnetización ocurre debido al desplazamiento de paredes de dominio, existe un criterio propuesto por Gaunt [86] para la determinación del tipo de anclaje de las paredes de dominio, que define un parámetro $\beta_0 = \frac{3F}{2\pi\gamma_p\delta}$, donde γ_p es la energía de pared, δ es el ancho de la pared y F es la máxima fuerza de restauración que puede ejercer un centro de

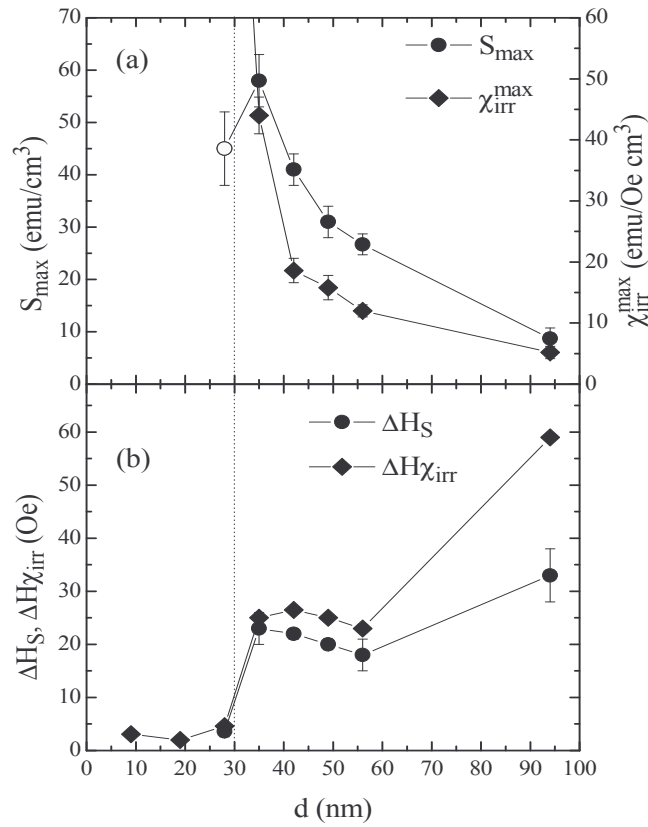


Figura 3.14: (a) Valor máximo de la viscosidad magnética S_{\max} y susceptibilidad irreversible χ_{irr}^{\max} en función del espesor d . El símbolo vacío corresponde a la muestra que se encuentra en el límite del comportamiento M vs. $\ln t$ lineal. (b) Distribución en el ancho en campo para los parámetros S_{\max} y χ_{irr}^{\max} , obtenidos de un ajuste gaussiano de la Fig. 3.13 y de la derivada en campo de m_d en la Fig. 3.7, respectivamente. La línea vertical indica $d = d_{\text{cr}} \sim 30$ nm.

anclaje sobre una pared. La fuerza de restauración puede ser estimada crudamente por la expresión [86]: $F = 1/2(4\pi M_s a/3)^2$, siendo a el radio de los centros de anclaje y $\gamma_p = K\delta$ la energía de pared, de manera tal que:

$$\beta_0 = \frac{4\pi M_s^2}{3K} \left(\frac{a}{\delta}\right)^2 = \frac{2}{3Q} \left(\frac{a}{\delta}\right)^2. \quad (3.14)$$

En esta serie de muestras el factor de calidad que tenemos es $Q \sim 0.3$ y un tamaño de grano promedio de 4 nm [34], lo que usaremos como tamaño de los centros de anclaje promedio. El ancho de las paredes puede estimarse como $\delta = 2\sqrt{A/K_{\perp}} \sim 16$ nm, donde tomamos a la constante de intercambio $A = 0.6 \times 10^{-6}$ erg/cm y $K_{\perp} = 1.5$ erg/cm³. Con estos parámetros, encontramos $\beta_0 \sim 0.14 < 1$, indicando que nuestras películas se encuentran en el régimen de anclaje débil, por lo que usamos $c = 2$ en la Ec. 3.12 [82]. En la Fig. 3.15 graficamos los valores de V_{ac} así obtenidos en función del espesor. Se puede observar que, dentro del error experimental, no existe diferencia entre el cálculo del volumen tomando los valores máximos de la viscosidad y la susceptibilidad

o un valor medio. Incluso, parece mantenerse aproximadamente constante en todas las muestras, con un valor medio $\bar{V}_{ac} = (1.37 \pm 0.30) \times 10^4 \text{ nm}^3$, lo que, suponiendo un volumen esférico, equivale a un diámetro de $\bar{d}_{ac} = (30 \pm 6) \text{ nm}$. Este diámetro es mayor que el tamaño de grano, lo que implica que en las muestras con $d > d_{cr}$, aunque el tipo de interacción dominante sea dipolar existe algún mecanismo de acople de intercambio entre granos que contribuye a una reversión de la magnetización en forma coherente de varios granos. Esto es consistente con el hecho que el parámetro de interacción α_i sea positivo para $d = 35 \text{ nm}$ (la primera muestra con *stripes*). Notar también que este valor del diámetro de activación es del mismo orden de magnitud que los espesores de las muestras y del semiperíodo cuando $d \gtrsim d_{cr}$, pero es menor que el largo de los *stripes*, lo que implicaría que el volumen magnético que se revierte por efectos térmicos es considerablemente menor que el volumen físico de los *stripes*.

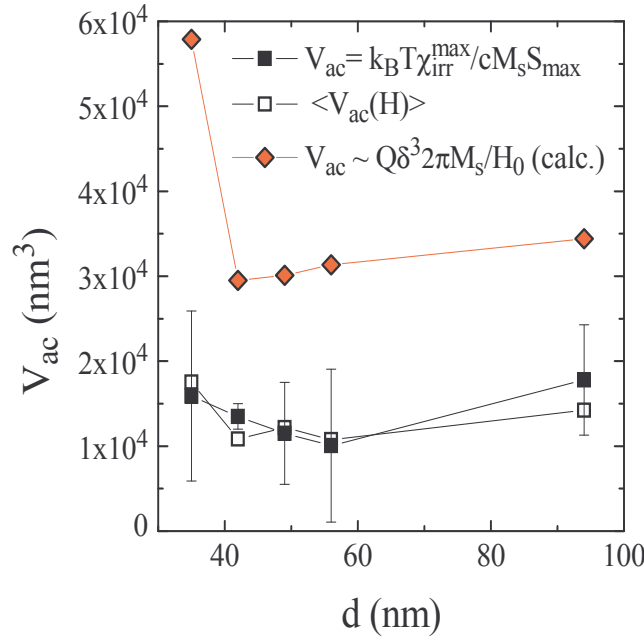


Figura 3.15: Volumen de activación V_{ac} en función del espesor d . Los cuadrados llenos corresponden al cálculo de V_{ac} usando $S_{máx}$ y $\chi_{irr}^{máx}$ y los vacíos al promedio de diferentes medidas, con campos cercanos a H_{coer} . Los diamantes representan a V_{ac} calculados a través del modelo de Gaunt [86].

Es posible comparar el volumen de activación obtenido anteriormente con el calculado de forma teórica a través del modelo propuesto por Gaunt [86] para el caso de anclaje débil de paredes de dominio. En este caso, se supone que la energía de activación que se necesita para sobrepasar la barrera de energía depende linealmente del campo H [82, 86]:

$$\mathbf{E}_a = 31\gamma_p(\delta/4)^2(1 - H/H_0), \quad (3.15)$$

donde H_0 es el campo de anclaje a $T = 0$. Como V_{ac} se relaciona con la derivada en campo de la energía de activación, puede escribirse:

$$V_{ac} = \frac{d\mathbf{E}_a}{dH} \frac{1}{cM_s} = \frac{31\gamma_p(\delta/4)^2}{H_0} \frac{1}{cM_s} \sim \frac{Q\delta^3 2\pi M_s}{H_0}. \quad (3.16)$$

En el último término usamos $c = 2$, $\gamma_p = K\delta$ y el valor máximo de $H_{coer}(T) = H_C^{m\acute{a}x}$ como cota inferior de H_0 . Usando los datos de la Fig. 3.8 en la Ec. 3.16 calculamos el volumen de activación para las muestras con $d \geq 35$ nm y agregamos el V_{ac} así calculado a la Fig. 3.15. Este modelo da como resultado valores mayores (aproximadamente el doble) que los obtenidos a través de la Ec. 3.12. Esta diferencia puede haber sido causada por una subestimación del valor de H_0 o sobreestimación de δ . Aparte de esta discrepancia, V_{ac} obtenido experimentalmente parece ser poco dependiente del espesor de la película, en acuerdo con lo que predice la Ec. 3.16.

Otro procedimiento experimental para la determinación del volumen de activación, es el llamado “*waiting time method*”. Este modelo se basa en la suposición de que tanto S como χ_{irr} son relativamente constantes en campos cercanos a H_S . Si graficamos curvas $M(t, H)$ en función de $\ln(t/t_0)$, puede demostrarse que se cumple la siguiente relación [87]:

$$\Delta H = H_f \ln(t_i). \quad (3.17)$$

Si graficamos una línea a M constante en una figura donde se representa M vs. $\ln\left(\frac{t}{t_0}\right)$ para una serie de campos $H_0 + \delta H$, ΔH representa la distancia en campo entre dos puntos de intersección, y t_i el tiempo de la intersección. La gráfica de ΔH en función de $\ln(t_i)$ tiene como pendiente H_f a partir del cual puede calcularse V_{ac} a través de la Ec. 3.13.

En la Fig. 3.16 graficamos el campo de fluctuaciones calculado a través de los valores obtenidos previamente para V_{ac} y agregamos los datos calculados usando el “*waiting time method*”. A pesar de que el error es relativamente grande, puede observarse que todas las estimaciones realizadas con este método se encuentran en el mismo orden de magnitud y son relativamente constantes en el rango de espesores estudiados, de forma consistente con los valores previamente calculados usando medidas de remanencia y viscosidad.

Es interesante resaltar la diversidad de métodos que se utilizaron para calcular el volumen de activación y el campo de fluctuaciones, todos ellos resultando en valores aproximados entre sí, lo que da solidez al procedimiento empleado. Hasta el momento no se han reportado mediciones de remanencia y viscosidad en FePt en la fase A1 y los resultados son evidencia de la transición entre distintas estructuras de dominios magnéticos cuando se varía el espesor de la película.

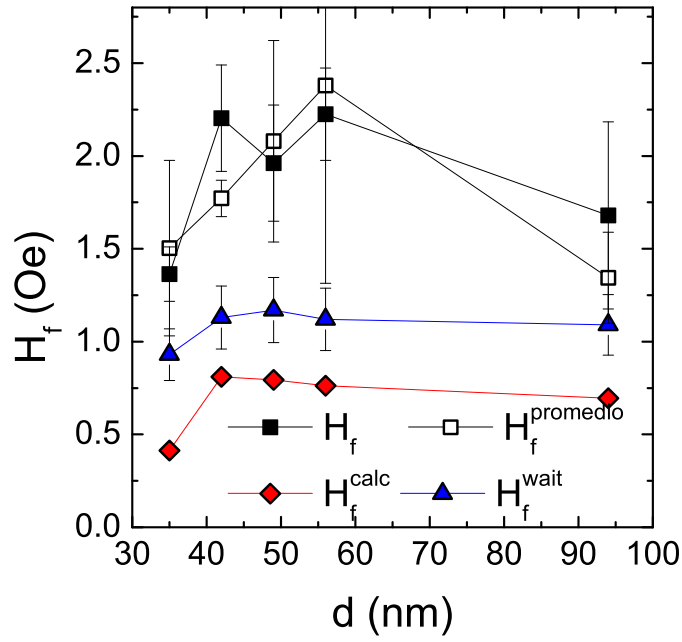


Figura 3.16: Campo de fluctuaciones H_f en función del espesor, obtenido a partir de la Fig. 3.15 y la Ec. 3.13. Graficamos el campo de fluctuaciones a partir de las medidas de S y χ_{irr} (cuadrados) y usando el modelo de Gaunt [86] a través de la Ec. 3.16. También se grafica H_f obtenido a partir de la relajación temporal de la magnetización a diferentes campos (“waiting time method”), representado por triángulos.

3.3. Medidas de resonancia ferromagnética

En la presente sección estudiamos la respuesta dinámica de la misma serie de muestras de FePt usando espectroscopía de Resonancia Ferromagnética (FMR) a temperatura ambiente y utilizando un rango amplio de frecuencias. Como es de esperarse, el aumento en la frecuencia resulta en un aumento del campo de resonancia y el ancho de línea, exhibiendo ambos un comportamiento anisotrópico cuando el campo externo rota de la dirección paralela a la perpendicular al plano de la película. Para explicar este comportamiento es necesario introducir un término de ensanchamiento inhomogéneo, independiente de la frecuencia, pero que varía con el espesor de la película. Esta contribución se suma al término de Gilbert, que es lineal con la frecuencia y, aunque en general es isotrópico, encontramos que varía cuando el campo externo está paralelo o normal al plano de la muestra.

3.3.1. Dinámica de la relajación en películas ferromagnéticas de FePt

Existen diferentes maneras de caracterizar la dinámica de relajación en un material magnético. La ecuación de movimiento de Landau-Lifshitz-Gilbert es la más

frecuentemente utilizada, la cual toma en consideración un amortiguamiento o “*damping*” en la precesión de la magnetización M , inmersa en un campo efectivo H_{eff} , que incluye no solo el campo externo, sino la contribución de posibles anisotropías del sistema [30]:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \times \left(\vec{H}_{\text{eff}} - \frac{\alpha}{\gamma |\vec{M}|} \frac{d\vec{M}}{dt} \right), \quad (3.18)$$

donde $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar}$ y α es el parámetro de *damping*. Una solución de la ecuación de movimiento para el primer modo uniforme de precesión puede ser obtenida usando el formalismo de Smit y Beljers [88] a partir del cual es posible deducir una relación de dispersión para el caso en que $\alpha = 0$. En la situación particular de una película con un campo de anisotropía en el plano de magnitud H_x y perpendicular efectivo, dado por $H_z = 4\pi M - \frac{2K_{\perp}}{M}$, es posible llegar a las siguientes expresiones para la relación de dispersión [89]:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 &= (H_{\perp} - H_x - H_z)(H_{\perp} - H_z) \\ \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 &= (H_{\parallel h} - H_x)(H_{\parallel h} + H_z) \\ \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 &= (H_{\parallel e} + H_x)(H_{\parallel e} + H_x + H_z) \end{aligned} \quad (3.19)$$

Aquí ω es la frecuencia angular de excitación ($\omega = 2\pi f$), los campos $H_{\parallel h}$ y $H_{\parallel e}$ son los campos de resonancia paralelos a los ejes difícil y fácil dentro del plano, respectivamente, y H_{\perp} es el campo de resonancia para H perpendicular a la película. Los ángulos que forma el vector \vec{H} con la normal al plano de la película se encuentran definidos en el recuadro de la Fig. 3.17. Las Ecs. 3.19 son válidas solo cuando la magnetización se encuentra completamente alineada con el campo externo, es decir, la muestra está en un estado saturado.

El segundo término en la expresión entre paréntesis de la Ec. 3.18 toma en consideración la relajación intrínseca que existe en todo experimento de resonancia ferromagnética. Usando el mismo formalismo de Smit y Beljers es posible deducir una relación para el ancho de línea pico a pico en función de la frecuencia de microondas, válida para la magnetización completamente alineada con el campo externo [90, 91]:

$$\Delta H = \frac{2}{\sqrt{3}} \alpha \frac{\omega}{\gamma}, \quad (3.20)$$

A pesar de que el parámetro de *damping* suele ser considerando isotrópico [92], existen múltiples reportes, tanto teóricos como experimentales, que muestran que α puede llegar a ser anisotrópico y que debe ser tratado como un tensor [93–95]. En forma más general, la Ec. 3.20 se escribe como:

$$\Delta H = \Delta H_0 + \frac{2}{\sqrt{3}} \alpha \frac{\omega}{\gamma}. \quad (3.21)$$

donde el término ΔH_0 toma en cuenta la presencia de un ensanchamiento inhomogéneo, independiente de la frecuencia, que describe los efectos de factores de amortiguamiento extrínsecos. Este término también puede ser anisotrópico.

Los espectros de resonancia fueron adquiridos a temperatura ambiente usando un espectrómetro comercial Bruker ESP300 a frecuencias $f = 1.17$ GHz (banda L), 9.4 GHz (banda X), 24 GHz (banda K) y 34 GHz (banda Q) con un campo magnético máximo de 2.1 T. Las medidas en alta frecuencia $f = 94$ GHz (banda W) fueron hechas en un Bruker Elexsys E680 en el Departamento de Física de la Universidad de Amberes, Bélgica. Las muestras se ubican en el extremo de una varilla de cuarzo en el centro de la cavidad resonante correspondiente a cada frecuencia, donde la derivada de la potencia absorbida es medida a través de un sistema Lock-in con un campo de modulación cuya intensidad es de 5-20 Oe y frecuencia 100 kHz. Las películas pueden ser rotadas dentro del resonador utilizando un goniómetro en la parte superior de la cavidad, con una resolución de $\sim 1^\circ$, para medir la dependencia angular del campo de resonancia. Dado que el tamaño de la cavidad depende de la frecuencia de microondas, también es necesario cambiar el tamaño de la muestras para no saturar la señal. En banda L, X, K y Q utilizamos las mismas muestras de un tamaño aproximado de 1×1 mm². La cavidad de banda W es considerablemente más pequeña, por lo que necesitamos un tamaño más pequeño $\sim 0.5 \times 1$ mm². También cabe destacar que parte del sustrato de Si debió ser afinado, ya que el volumen del mismo afecta el factor de calidad de la cavidad, disminuyendo la relación señal/ruido de forma considerable.

En la Fig. 3.17 graficamos la relación de dispersión en las direcciones principales dadas por las Ecs. 3.19 y también simulaciones numéricas para algunos ángulos intermedios. Para las simulaciones de los ángulos que se muestran en la figura, se usaron los parámetros $H_x = 60$ Oe, $H_z = 9000$ Oe y $g = 2.07$. Puede observarse que para banda X y frecuencias superiores ($\omega/\gamma \geq 3000$ Oe) existe absorción resonante para todas las orientaciones. En cambio, para banda L ($\omega/\gamma \sim 400$ Oe) se abre una brecha o “gap” en la relación de dispersión para $H = 0$ y la frecuencia de excitación pasa por debajo de las curvas ω/γ vs. H , por lo que solo existe absorción para orientaciones cercanas al eje de difícil magnetización en el plano.

En la Fig. 3.18 se muestra la forma de línea típica en todas las frecuencias de excitación en las que se realizaron mediciones, para la muestra de $d = 28$ nm, con el campo aplicado en dirección paralela al plano de la película y sin tener en cuenta la dirección de H_x . Notar que en esta configuración solo se observa una línea de resonancia, lo que valida el modelo propuesto en las Ecs. 3.19. Cuando H se aplica perpendicular al plano de la película pueden observarse líneas de absorción adicionales para películas

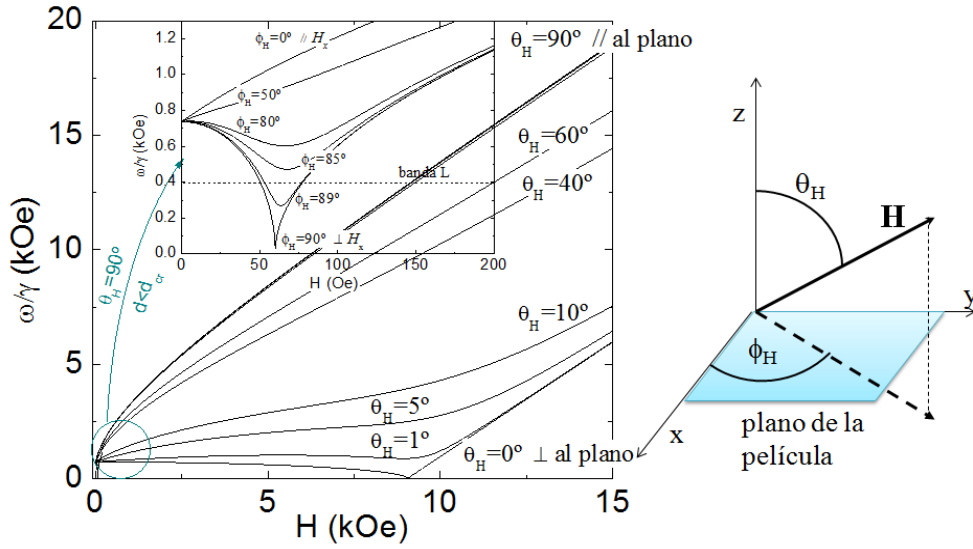


Figura 3.17: Relación de dispersión ω/γ vs. H con $\alpha = 0$ para una película magnética con un eje de fácil magnetización en el plano de magnitud $H_x = 60$ Oe y una anisotropía de plano fácil $H_z = 9000$ Oe. El cruce de estas curvas con una línea horizontal dada por la frecuencia de excitación nos indica el campo de resonancia. En el recuadro se muestra el detalle de una región de baja frecuencia (cercana a banda L) para $\theta = 90^\circ$ y diferentes alineaciones del campo externo respecto del eje de difícil magnetización en el plano. En el esquema de la derecha se definen los ángulos que forma H con la normal al plano de la película y su proyección en el plano.

con $d \geq 28$ nm en bandas X, K y Q (en banda W no pueden verse debido a que el ancho de línea es mayor que la separación entre los distintos modos), asociadas a ondas de spin estacionarias [96]. En estos casos usamos el valor del campo de resonancia y ancho de línea del modo fundamental. En la película con $d = 28$ nm, en principio no se espera detectar una resonancia en banda L cuando H es paralelo al plano de la película. Sin embargo, en la Fig. 3.18 se muestra una línea de resonancia en $H_{r\parallel} \sim 69$ Oe. Esto puede deberse a que a este campo es menor que $H_{s\parallel}$ y las Ecs. 3.19 son válidas cuando la magnetización está completamente saturada.

El valor del campo de anisotropía en el plano fue estimado por medio de una variación angular en banda X para las películas más delgadas de la serie $d = 9, 19$ y 28 nm, usando la relación $H_x \sim 2/3(H_{\parallel h} - H_{\parallel e})$, válida en el límite $H_x \ll \omega/\gamma$. Las muestras más gruesas $d > d_{cr}$ tienen la característica de poseer anisotropía rotacional [18], por lo que presentan una variación angular isotrópica en el plano en los experimentos de FMR. La presencia de una anisotropía dentro del plano produce cambios relativamente grandes en el campo de resonancia a bajas frecuencias (Fig. 3.17). Esto se debe a la forma particular de la relación de dispersión a bajas frecuencias, que surge de la presencia del campo de anisotropía H_x , que genera un salto en frecuencia de magnitud $\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)_{H=0}^2 = H_x(H_x + H_z)$. Usando los mismos

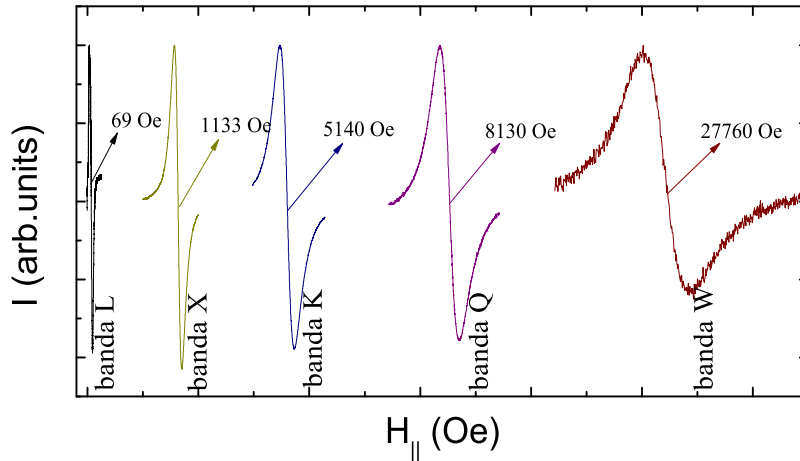


Figura 3.18: Espectros normalizados típicos de FMR para la muestra de $d = 28$ nm en las cinco frecuencias de excitación disponibles. El campo externo es aplicado en dirección paralela al plano y en la figura se indica el campo de resonancia correspondiente a cada banda. Notar tanto el corrimiento a campos más grandes como el incremento en el ancho de línea a medida que aumenta la frecuencia.

parámetros que en la Fig. 3.17, podemos estimar un valor para $\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)_{H=0}^2 \sim 750$ Oe, que es más grande que la frecuencia para banda L, $\omega/\gamma \sim 400$ Oe. En nuestro caso fue imposible hallar una absorción de resonancia para esta frecuencia para la mayor parte de las muestras, especialmente para las de mayor espesor, $d > d_{cr}$, a pesar de que las mediciones en estas películas son isotrópicas en el plano. Una posible explicación es que existen ejes de fácil magnetización distribuidos al azar en el plano. Esto da como resultado una suma aleatoria de las curvas que graficamos en la Fig. 3.17, lo cual es esencialmente diferente a la situación donde $H_x = 0$. Como mostraremos más adelante, nuestro análisis de los anchos de línea es consistente con esta interpretación.

Además del aumento en el campo de resonancia con la frecuencia, que puede ser deducido de forma directa a través de las Ecs. 3.19, también se puede ver una dependencia lineal del ancho de línea con la frecuencia de microondas (comportamiento que predice la Ec. 3.21), tanto para geometría con campo aplicado paralelo (Fig. 3.19 (a)) como perpendicular (Fig. 3.19 (b)) al plano de la película. Encontramos que en ambas orientaciones la dependencia en frecuencia del ancho de línea es aproximadamente lineal, pero en la geometría paralela destaca el hecho de que ΔH_{\parallel} vs. ω/γ mantiene la pendiente pero no así la ordenada al origen, la cual cambia para las muestras con espesores menores y mayores a d_{cr} . Los anchos de línea fueron ajustados usando la relación lineal de la Ec. 3.21, obteniendo de esta forma los valores del parámetro de *damping* para las configuraciones paralela y perpendicular: $\alpha_{\parallel} = 0.025(1)$ y $\alpha_{\perp} = 0.021(1)$. Estos fueron calculados promediando las pendientes de las curvas ΔH vs. ω/γ , que resultan muy similares para todos los espesores. Como

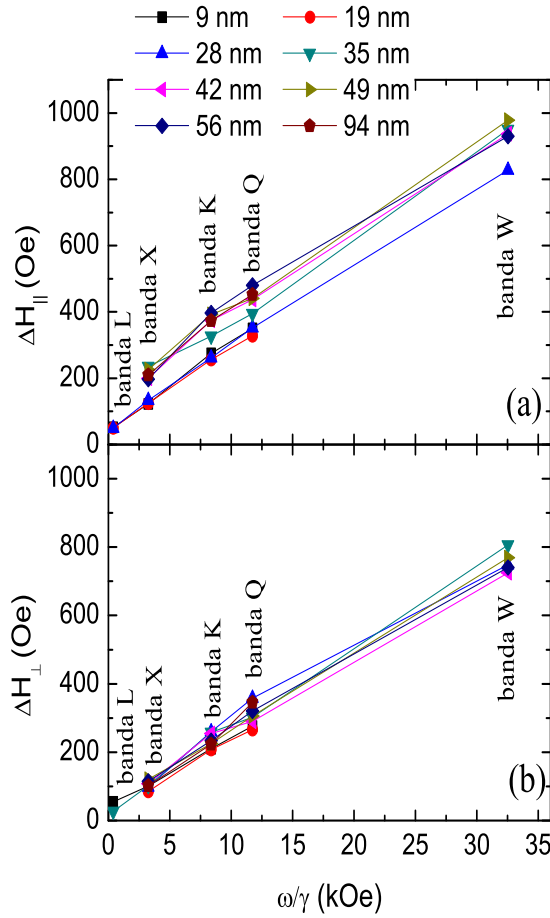


Figura 3.19: Ancho de línea en función de la frecuencia de excitación ω/γ para todas las muestras de la serie, en el rango $f = 1.2-94$ GHz. (a) Geometría con campo externo aplicado paralelo y (b) perpendicular al plano de la película. En (a) pueden verse dos grupos de medidas, ambos con la misma pendiente, pero diferente ordenada al origen.

se esperaba, este resultado confirma que el mecanismo intrínseco de amortiguamiento es independiente del espesor de las películas.

Hasta el momento, aparte de los resultados que hemos publicado en la Ref. [97], los únicos parámetros de Gilbert previamente reportados en películas de FePt correspondían a la fase ordenada $L1_0$, en la cual no es posible realizar medidas de resonancia ferromagnética debido a la alta constante de anisotropía que dificulta la detección de absorciones resonantes [91]. Aún así un valor efectivo de α ha sido reportado en películas ordenadas parcialmente, usando experimentos de efecto Kerr magneto-óptico en los que se pulsa la excitación para luego medir la respuesta temporal[98, 99]. El límite superior reportado en este caso es $\alpha \sim 0.055$ para películas magnetizadas de forma perpendicular y $\alpha \sim 0.028$ en el caso de magnetización paralela al plano de la película.

Como hemos mostrado en la Fig. 3.19, es claro que los valores para α_{\parallel} y α_{\perp} son diferentes, lo que implica que nuestras películas tienen un parámetro de *damping*

anisotrópico y es necesario tratarlo como a un tensor. Por ejemplo, en la Ref. [95] se discute que el coeficiente α puede tomar valores mayores en la dirección de una tensión externa. Como sabemos que las muestras se encuentran sujetas a una fuerte tensión biaxial en el plano (lo que se discutirá en mayor detalle en el capítulo 4), esta puede ser la causa de que $\alpha_{\parallel} > \alpha_{\perp}$. En otros trabajos [93] se propone que el parámetro de Gilbert es proporcional a la constante de magnetostricción λ , la cual suele ser anisotrópica.

En la Fig. 3.20 se muestran los valores del ancho de línea debido a ensanchamiento por inhomogeneidades ΔH_0 vs d . Estos valores se obtuvieron de la ordenada al origen de los ajustes lineales de la Fig. 3.19. Existe una diferencia notable en la contribución al ancho de línea entre las muestras más gruesas y las más delgadas, cuando H es aplicado paralelo o perpendicular al plano de la película.

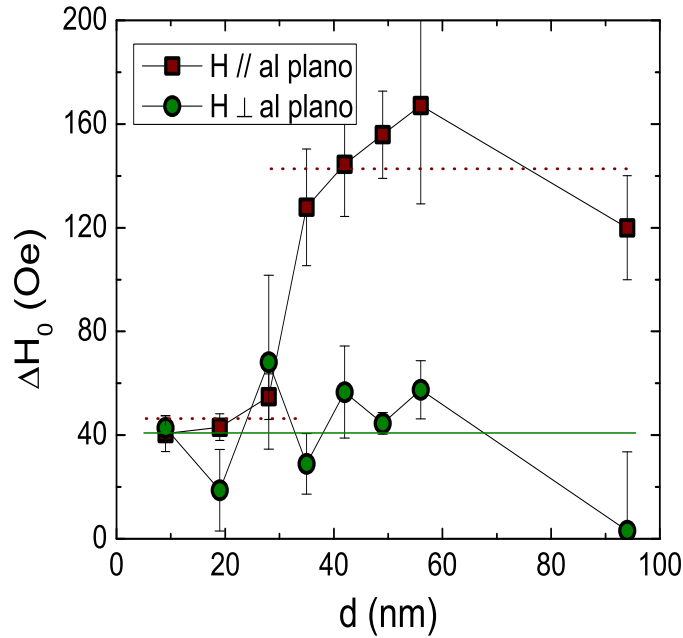


Figura 3.20: Ancho de línea debido a efectos de ensanchamiento por inhomogeneidades obtenido a través de la ordenada al origen de los ajustes de la Fig. 3.19. Es claro el aumento en ΔH_0 cuando $d > d_{cr}$ y el campo externo es aplicado en la dirección paralela al plano de la película. En cambio, los valores obtenidos cuando H es perpendicular son aproximadamente constantes e independientes del espesor. La línea horizontal sólida representa el valor medio cuando H es aplicado en la dirección perpendicular y las punteadas, para la geometría paralela al plano de la película.

Como puede observarse en la Fig. 3.19 (a), los dos grupos de muestras siguen aproximadamente la misma dependencia lineal, pero con una ordenada al origen apreciablemente diferente. Encontramos un valor medio para $\Delta H_{0\parallel} = 46(7)$ Oe para $d < d_{cr}$ y $\Delta H_{0\parallel} = 143(19)$ para $d > d_{cr}$. Cuando el campo es aplicado en la geometría perpendicular, puede extraerse un solo valor para el promedio $\Delta H_{0\perp} = 40(22)$ Oe, del

mismo orden que $\Delta H_{0\parallel}$ para las películas más delgadas. La explicación para el aumento en la contribución al ensanchamiento por inhomogeneidades para $d > d_{\text{cr}}$ parece estar relacionada con la aparición de los dominios en forma de *stripes*. La estructura de dominios en *stripes* no consiste en tiras perfectamente ordenadas y paralelas entre sí, sino que forma un patrón tipo laberinto con puntos donde los *stripes* se unen o dividen, pero con una orientación preferencial en una cierta dirección. Según se discute en la Ref. [100], la presencia de un pequeño campo transversal efectivo es el que causa un pseudo-eje de anisotropía con el eje fácil alineado en la dirección de los *stripes*. Si la orientación de este campo transversal fluctúa en regiones microscópicas de la película, puede esperarse que los *stripes* pierdan su paralelismo y el campo de resonancia paralelo se disperse en un rango de valores dado por el valor absoluto de este campo de anisotropía variable. Este campo de anisotropía ha sido estimado previamente ~ 400 Oe con una dispersión angular de $\sim 16^\circ$ [18]. En una primera estimación, este campo transversal debe incrementar el ancho de línea aproximadamente en $\sin(16^\circ) \times 400$ Oe ~ 110 Oe, valor muy cercano al salto en $\Delta H_{0\parallel}$ para películas con $d > d_{\text{cr}}$.

3.4. Conclusiones

En esta primera serie de muestras, partimos de un análisis del espesor crítico en función de T . Para hacerlo, se midió el campo coercitivo en función de la temperatura, tomándolo como un indicativo de la configuración de dominios magnéticos. Mostramos que cambios en la temperatura pueden inducir una transición entre *stripes* y dominios planares. Este efecto se observa en el rango $35 \leq d \leq 56$ nm y es originado por una deformación en la interfaz producto de la diferencia entre los coeficientes de expansión térmica del sustrato y el FePt. En las muestras más gruesas, el cambio en Q no es suficiente para perder la estructura en *stripes*. Estos resultados pueden ser explicados satisfactoriamente considerando la dependencia funcional con T de la tensión inducida por factores térmicos.

Encontramos que cuando el espesor de las películas es mayor que el espesor crítico, las interacciones tienden a ser del tipo dipolar, mientras que cuando $d < d_{\text{cr}}$ obtenemos valores positivos de la constante de interacción α_i , indicando que las interacciones de intercambio son las predominantes. Este cambio es probablemente producto de la intensidad relativa del campo dipolar presente en las películas con dominios tipo *stripes*, que tiende a favorecer un estado desmagnetizado.

Usando un rango amplio de frecuencias de excitación en experimentos de FMR, logramos medir el parámetro de Gilbert α y la contribución inhomogénea al ancho de línea ΔH_0 . Encontramos valores menores de α que los previamente reportados para FePt en la fase ordenada, aunque probablemente esto sea porque en nuestro caso

podimos separar las contribuciones inhomogéneas del parámetro de amortiguamiento intrínseco.

Capítulo 4

Origen de la anisotropía perpendicular en películas delgadas de FePt

4.1. Motivación y objetivos

Con el objetivo de determinar el origen de la componente perpendicular de la anisotropía K_{\perp} en películas de FePt, se fabricó una serie de muestras con espesor nominal constante de 100 nm, utilizando técnicas de *sputtering* DC y variando la presión de argón en la cámara de *sputtering* entre 3 y 13 mTorr. Los estudios que realizamos nos permitieron corroborar que las tensiones residuales en las muestras dependen de P_{Ar} . También pudimos observar que, desde el punto de vista de la estructura cristalina, el tamaño de la cristalita y la forma en la que se orientan los granos en la muestra (textura cristalina) no existe una dependencia significativa con P_{Ar} . Esto nos permitió controlar la componente de la anisotropía magnética perpendicular debida a efectos magnetoelásticos, sin variar de forma significativa la contribución magnetocristalina.

4.2. Fabricación

Las muestras que estudiamos en este capítulo son películas delgadas de FePt de espesor nominal constante de 100 nm con una capa protectora de Pt de aproximadamente 5 nm. Fueron fabricadas utilizando técnicas de *sputtering* DC sobre sustratos de silicio monocristalino (100) con capa de óxido amorfo nativo usando diferentes presiones de argón dentro de la cámara: $P_{Ar} = 3, 5, 7, 9, 11$ y 13 mTorr. Se utilizó un blanco de FePt de 3.8 cm de diámetro de composición nominal equiatómica 50/50. La cámara fue vaciada hasta llegar a una presión de base de $\sim 2 \times 10^{-6}$ Torr y

las muestras fueron crecidas utilizando una potencia de 20 W, una corriente ~ 60 mA y un voltaje ~ 320 V. Con estos parámetros se realizó una calibración de las velocidades de depósito del FePt y del Pt. En el caso del FePt se hicieron dos depósitos de 180 segundos a diferente presión de argón $P_{Ar} = 3$ y 9 mTorr. Ambas calibraciones dieron como resultado valores similares de ~ 0.22 nm/s, lo que nos indica que para la potencia utilizada, la velocidad de depósito es aproximadamente constante para el rango de P_{Ar} de interés. Para el caso del Pt la calibración se realizó con un solo depósito de 180 segundos a 3 mTorr y se obtuvo un valor de 0.28 nm/s.

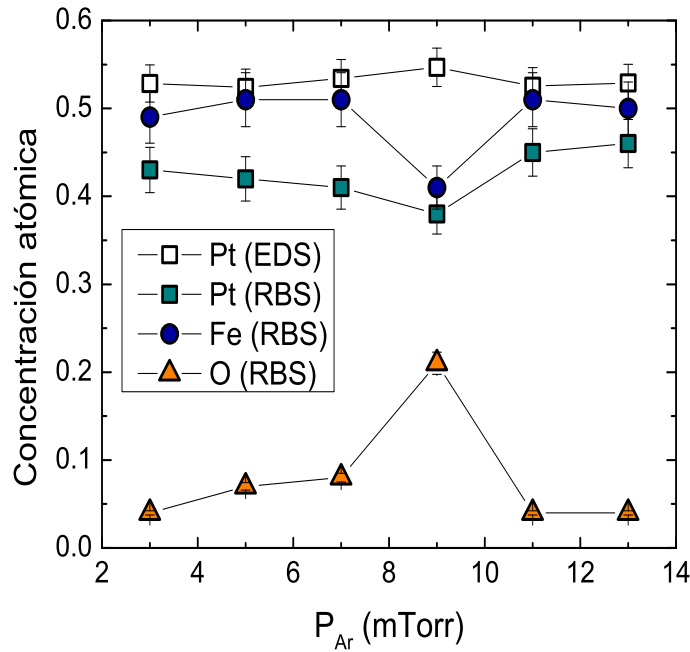


Figura 4.1: Variación de las cantidades atómicas de los elementos Pt, Fe y O, con el aumento de la presión de argón, medido por RBS y, en el caso del Pt, por EDS.

Para comprobar si existe alguna variación en la composición a medida que se aumenta la presión de Ar durante el proceso de crecimiento, realizamos medidas de EDS (Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy) y RBS (Rutherford Back Scattering) en cada una de las muestras (ver Fig. 4.1). Como se describió en el capítulo de técnicas experimentales, las medidas de EDS fueron realizadas en un microscopio SEM tomando datos en dos zonas diferentes de la película durante 200 s. El tamaño del área de medición era de aproximadamente 0.2×0.3 mm².

RBS es una técnica espectroscópica que permite determinar la estructura y composición de materiales mediante la medición de iones retrodispersados de un haz de alta energía, usualmente en el rango de 1-3 MeV, que impacta en la muestra. En nuestro caso usamos como fuente de iones partículas alfa (iones de He²⁺). Se utilizaron partículas alfa de 2 MeV con intensidad de 3.5 nA para una carga

acumulada sobre las muestras de 1 a 2 μC . Los espectros se obtuvieron en el Laboratorio del Acelerador de iones Tándem de 1.7 MV del CAB.

Dentro del error de medición, los datos EDS no muestran una dependencia directa entre la composición y la presión de argón en la cámara, en el rango $3 \leq P_{\text{Ar}} \leq 13$ mTorr, dando un valor medio Fe/Pt: 47(2)/53(2). Este resultado difiere de la composición nominal 50/50, pero es cercano a medidas realizadas sobre el blanco que arrojan una composición Fe/Pt: 45/55, también algo más rica en Pt. Sin embargo, las mediciones en RBS parecen indicar una mayor concentración atómica de Fe, lo que contradice las medidas de EDS. A pesar de esto, los valores obtenidos por RBS también son relativamente independientes de P_{Ar} , lo cual indica que la composición de la serie de muestras es la misma.

Otra ventaja de la técnica RBS es su sensibilidad a la presencia de oxígeno, a diferencia de la técnica de difracción de RX con la cual no solo no se pueden ver los oxígenos, sino que en este caso tampoco hemos detectado ningún pico asociado al óxido de hierro¹ en los difractogramas. En la Fig. 4.1 podemos ver que la relación entre las fracciones relativas de cada elemento se mantiene aproximadamente independiente de la presión de Ar utilizada en la cámara de *sputtering*. La única excepción es la muestra con $P_{\text{Ar}} = 9$ mTorr donde el aumento de oxígeno probablemente se deba a alguna falla del sistema de vacío durante el proceso de crecimiento. Debido a que no se realizaron medidas de XPS en esta muestra, no es posible afirmar si la mayor presencia de oxígeno es debida a incorporación en el volumen o a una capa de óxido superficial más gruesa. La presencia de oxígeno en las medidas de RBS puede también provenir de la capa de óxido nativo presente en los sustratos de Si. Se ha reportado un estudio morfológico de los sustratos de Si (100) comerciales [101] en los cuales se usaron mediciones de XPS y microscopía de transmisión TEM que permitió estimar el espesor de la región de mayor concentración de óxido cerca de la superficie en aproximadamente 2.5 ± 0.5 nm.

En otra serie de muestras similar, con espesor constante y presión de argón entre $3 \leq P_{\text{Ar}} \leq 23$ mTorr, se hicieron medidas de Espectroscopía de Fotoelectrones emitidos por Rayos-X (XPS, por sus siglas en inglés). Esta técnica consiste en irradiar con rayos X una muestra y medir la energía cinética y el número de electrones que escapan de la superficie del material analizado, brindando información acerca de la estequiometría y la estructura electrónica del material. Al ser una técnica superficial, suele hacerse un *sputtering* de átomos de Ar, para ir accediendo a información del interior de la muestra. Es por eso que el experimento debe realizarse en condiciones de ultra alto vacío, para prevenir la incorporación de oxígeno y contaminantes como carbono. En la Fig. 4.2 se presenta una porción del espectro de XPS para una película de FePt de 100 nm de espesor crecida a $P_{\text{Ar}} = 5$ mTorr, junto con el blanco de FePt y muestras

¹El óxido de hierro se forma más comúnmente en la fase Fe_2O_3 , también llamada trióxido de hierro, que es la más estable.

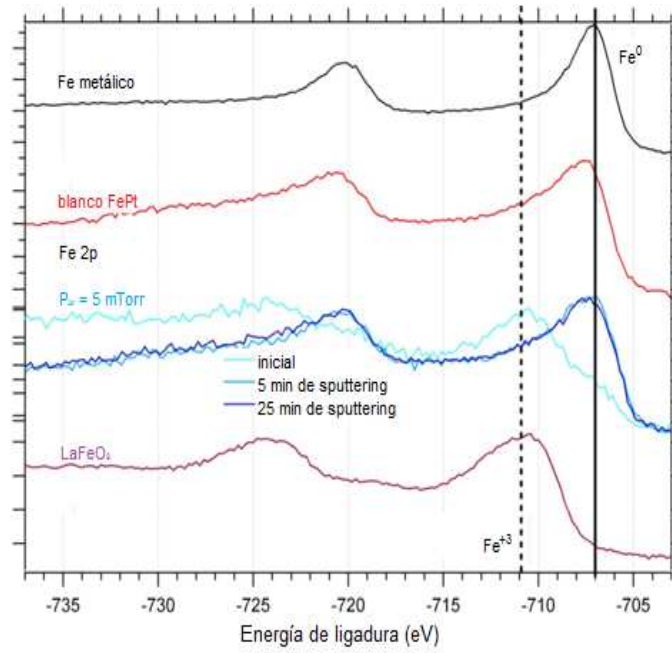


Figura 4.2: Espectros XPS de Fe 2p tomados para la película de FePt, con espesor $d = 100$ nm y fabricada a $P_{Ar} = 5$ mTorr luego de haber introducido la película en la cámara y después de 5 y 35 min de comido por *sputtering*. También se incluyen una referencia de Fe metálico, de óxido de hierro Fe_2O_3 (estado de oxidación Fe^{+3}) en el compuesto $LaFeO_3$ y el espectro del blanco de FePt. Las líneas verticales indican la posición esperada para el pico correspondiente al Fe^0 en compuestos metálicos (línea continua) y Fe^{+3} (línea punteada).

de Fe metálico y $LaFeO_3$ (este último a modo de patrón para comparar con el pico de Fe_2O_3).

Puede verse en la Fig. 4.2 que el óxido de hierro tiende a formarse de manera superficial y en ninguna de las dos muestras se propaga la oxidación al volumen. También es necesario remarcar que las muestras de este último estudio no tenían una capa protectora, a diferencia de la serie que usamos en este capítulo (y también las series que usamos en el resto de esta tesis), que cuenta con capa de ~ 5 nm de Pt.

4.3. Caracterización estructural

La caracterización estructural de esta serie de muestras se realizó principalmente a través del análisis de difractogramas de rayos X. Esto nos permitió hacer un estudio de características tales como tamaño de grano promedio, distancia interplanar en la dirección [111] (d_{111}), análisis de textura y fluctuaciones de d_{111} debido a microdeformaciones en las cristalitas. Para algunas de las muestras fue posible usar el método $\sin^2\psi$, que se utiliza para calcular la deformación en la dirección perpendicular al plano de la película. Se midieron figuras de polos de cuatro

direcciones cristalográficas para la muestra de FePt 3 mTorr, lo que nos permitió observar con mayor detalle la distribución de orientaciones de los granos.

4.3.1. Difracción de rayos X

El primer paso para la caracterización estructural de cada una de las muestras fue realizar un difractograma de rayos X. Se utilizó un difractómetro Philips modelo PW-1700 con una fuente de radiación de CuK_α , de longitud de onda $\lambda_{\text{Cu}} = (2\lambda_{K_{\alpha 1}} + \lambda_{K_{\alpha 2}})/3 \sim 0.15419$ nm. En el caso de películas delgadas, es muy importante realizar un hamacado previo a la medición para asegurar la correcta alineación de la muestra. Para hacerlo elegimos la reflexión (400) perteneciente al sustrato de Si, principalmente porque es un pico intenso y bien definido, además de encontrarse ampliamente tabulada su posición en 2θ . En la Fig. 4.3 podemos ver los difractogramas de todas las muestras de esta serie para el rango angular $30^\circ < 2\theta < 90^\circ$.

En el rango medido se observan, además de las reflexiones del sustrato de Si, las correspondientes a los planos (111), (200), (311) y (222) pertenecientes a la fase fcc-A1 del FePt. También puede verse un pico relativamente pequeño en $2\theta \sim 39^\circ$ que corresponde a la reflexión de los planos (111) de la capa protectora de Pt. Como mencionamos en la sección anterior, en ningún caso se observan reflexiones que puedan asociarse a óxidos de Fe. En particular, uno de los parámetros de interés para el estudio de las películas de FePt es la distancia entre los planos $\{111\}$, d_{111} , la cual se relaciona con la posición $2\theta_{111}$ a través de la ley de Bragg $\lambda_{\text{Cu}} = 2d_{\text{hkl}} \sin \theta$. La posición de esta reflexión se mueve a ángulos más altos a medida que incrementamos P_{Ar} , indicando un reducción en d_{111} (Fig. 4.4). Notar que el cambio en la distancia interplanar que ocurre entre las muestras de FePt 3 y 13 mTorr es de solo $\sim 0.5\%$.

También se realizó un difractograma sobre una pequeña porción de muestra cortada del blanco de FePt que usamos para la fabricación de las películas (ver Apéndice A). Debido al método de fabricación del blanco puede suponerse que las distancias interplanares corresponden a un estado relajado, que llamaremos $d_{111-\text{vol}}$. Sin embargo, tanto el mismo difractograma como mediciones de magnetización en función del campo nos permitieron deducir que el blanco no se encuentra completamente en la fase A1, sino que (al menos) existen regiones en la fase tetragonal L1_0 . Por esta razón, hay que ser cuidadoso en el tratamiento del parámetro de red así obtenido. En la Fig. 4.4 (a) se observa que la diferencia entre d_{111} y $d_{111-\text{vol}} \sim 0.22025$ nm decrece a medida que P_{Ar} aumenta, lo que es una primera indicación de que las tensiones asociadas a la deformación de la celda cristalina tienden a relajarse. También hemos indicado en la figura la distancia interplanar para una película libre de tensiones, cuyo valor estimamos más adelante en la sección 4.3.2.

En la Fig. 4.4 (b) representamos la relación de intensidades entre los picos de

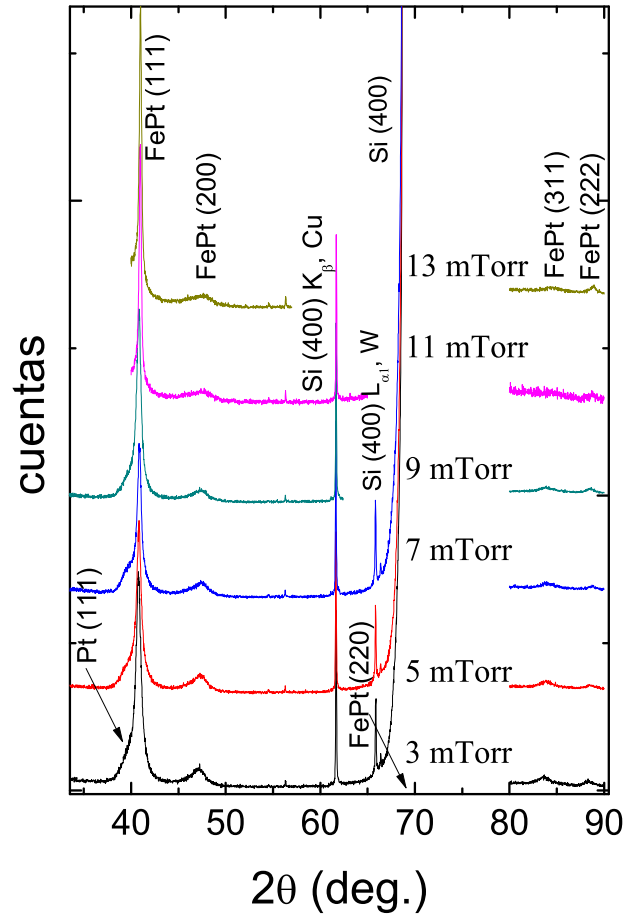


Figura 4.3: Difractogramas de la serie FePt de 100 nm de espesor y distintas presiones de argón. Excepto los picos correspondientes a la capa protectora de Pt y al sustrato de Si indicados en la figura, todas las reflexiones que se observan en el rango $30^\circ < 2\theta < 90^\circ$ pueden ser indexadas como pertenecientes a la fase cristalina A1 del FePt. También se señala la posición aproximada de la reflexión FePt(220), cercana a la mucho más intensa correspondiente al Si(400).

difracción (111) y (200), ya que son los más intensos dentro del rango medido. Existen varios factores que influyen en la intensidad de las líneas de difracción. Si no tomamos en cuenta la contribución por temperatura y texturas, la intensidad relativa de una reflexión (hkl) estará dada básicamente por el factor de estructura, la multiplicidad y el factor de Lorentz-Polarización. Si hacemos este cálculo para las reflexiones (111) y (200) de un material con estructura cristalina fcc y un factor de estructura promedio para FePt A1, obtenemos que la relación de intensidades para un polvo o una película con granos orientados completamente al azar es $I_{111}/I_{200} \sim 1.8$ (línea horizontal en la Fig. 4.4 (b)). Esto nos permite deducir que las muestras presentan una fuerte textura en la dirección [111] ya que en todas las películas de la serie $I_{111}/I_{200} > 10$.

Es llamativo que esta textura parece incrementarse a medida que aumentamos P_{Ar} . En la sección 1.4.2 de la introducción hicimos un breve repaso del origen de las

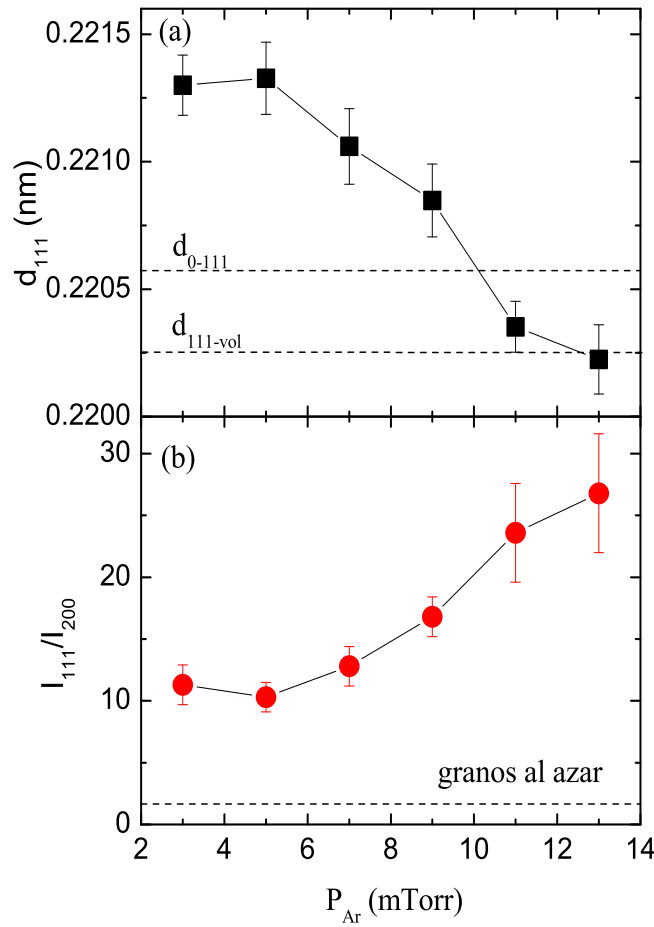


Figura 4.4: (a) Distancia interplanar d_{111} y (b) relación entre las intensidades de los picos de difracción (111) y (200) de FePt. Las líneas horizontales en (a) corresponden a lo medido para una porción del blanco de FePt en volumen y d_{0-111} a lo calculado usando el método de $\sin^2 \psi$ (como se explica en la sección 4.3.2). La línea horizontal en (b) es la estimación de la relación de intensidades en el caso de granos orientados al azar.

tensiones en muestras policristalinas y definimos el factor de anisotropía de Zener en función de las constantes elásticas del material C_{ij} , como: $A_Z = 2C_{44}/(C_{11} - C_{12})$, siendo típicamente $A_Z > 1$ para metales fcc. Hasta el momento, no se reportaron datos experimentales de las constantes elásticas del FePt en la fase A1. Existe un trabajo experimental [102] en películas delgadas de FePt L1₀, en el cual por medio de una estimación se llega a un rango de $A_Z \sim 2 - 3$. Sin embargo, otros trabajos teóricos [103, 104] concluyen que $A_Z \lesssim 1$, pero a partir de valores en las constantes elásticas (en particular C_{12} y C_{44}) que difieren al menos en un factor 5 con los valores experimentales usualmente reportados para aleaciones metálicas fcc, llegando a un valor para el coeficiente de Poisson $\nu = C_{12}/(C_{11} + C_{12}) \sim 0.02$, muy lejano al valor aceptado habitualmente $\nu_{FePt-A1} \sim 0.33$. Estas discordancias hacen que el resultado para el factor de Zener no sea confiable. Hay trabajos en los que se reportan las constantes elásticas para el compuesto isoestructural FePd [105, 106] (la aleación

FePd comparte similares características, tanto estructurales como magnéticas con FePt) en la fase A1, llegando a $A_Z = 3.1$. Para la fase L1₀ se ha reportado $A_Z \sim 2.8$. Aunque no es posible deducir un valor específico, estos últimos resultados nos permiten suponer que para nuestras películas es adecuado asumir $A_Z \gtrsim 1$. En esta situación, las películas sometidas a tensiones relativamente grandes favorecen para el crecimiento una orientación en la dirección [100], dado que esta orientación minimiza la densidad de energía elástica de deformación (esto se explicó en mayor detalle en la sección 1.4.2). A medida que las tensiones relajan, la minimización de las energías de interfaz y superficie hace que se desarrolle aún más la textura [111]. Esta interpretación es consistente con el comportamiento de los datos experimentales presentados en la Fig 4.4(b), que muestra un aumento en la textura [111] a medida que crece P_{Ar} .

También se hizo un análisis de los anchos de los picos de difracción $\Delta 2\theta_{hkl}$ para las reflexiones (111) y (222). Existen distintos factores que contribuyen al ensanchamiento de los picos en difractogramas de rayos-X, siendo los más importantes el tamaño finito de los granos y las fluctuaciones en la distancia interplanar debida a microdeformaciones.

En el análisis de las contribuciones al ancho de los picos de difracción también deben tenerse en consideración los factores instrumentales. Para hacerlo, medimos el ancho del pico (400) correspondiente al sustrato de Si ($2\theta \sim 69.8^\circ$) que, al tratarse de un monocristal perfecto, nos permite hacer la suposición de que el ensanchamiento es puramente instrumental. Para restar esta contribución, es necesario tener en consideración la forma de la línea: si es gaussiana las contribuciones al ensanchamiento de los picos se suman de forma cuadrática, mientras que si es lorentziana, la suma es directa. En todas las muestras, la forma de los picos fue ajustada siempre de forma satisfactoria por una lorentziana, por lo que restamos de forma directa el ancho medido, que estimamos en $\Delta 2\theta_{instr} \sim 0.05^\circ$. En esta estimación no tomamos en cuenta una posible dependencia angular.

Como primera aproximación podemos considerar que el ensanchamiento es debido sólo al tamaño finito de las cristalitas, que supondremos esféricas de diámetro d_{crist} , por lo que podemos usar la fórmula de Scherrer (Ec. 1.1) que describimos con anterioridad en la Introducción y está dada por:

$$d_{crist} = \frac{2}{\pi} \frac{K \lambda_{Cu}}{\Delta 2\theta \cos \theta},$$

donde $K \lesssim 1$ es un factor adimensional dependiente de la forma. El factor $2/\pi$ surge de la proporcionalidad entre la distancia a altura mitad medida de forma directa y el ancho de línea de una función lorentziana. De esta fórmula es posible predecir, por ejemplo, el ensanchamiento esperado para la reflexión (222) a partir de $\Delta 2\theta_{111}$ a través de la

expresión: $\Delta 2\theta_{222} = \Delta 2\theta_{111} \cos \theta_{111} / \cos \theta_{222}$. Por otro lado, si solo consideramos que el ensanchamiento es debido a una distribución en la distancia interplanar de ancho Δd_{hkl} causada por microdeformaciones en los granos, $\Delta 2\theta$ toma otra dependencia angular: [38]

$$\Delta 2\theta \sim \frac{8}{\pi} \frac{\Delta d_{hkl}}{d_{hkl}} \tan \theta. \quad (4.1)$$

Nuevamente, podemos hacer una estimación del ensanchamiento del pico (222) a partir de los datos medidos de la reflexión (111), pero ahora considerando solo el efecto de las microdeformaciones: $\Delta 2\theta_{222} = \Delta 2\theta_{111} \tan \theta_{222} / \tan \theta_{111}$

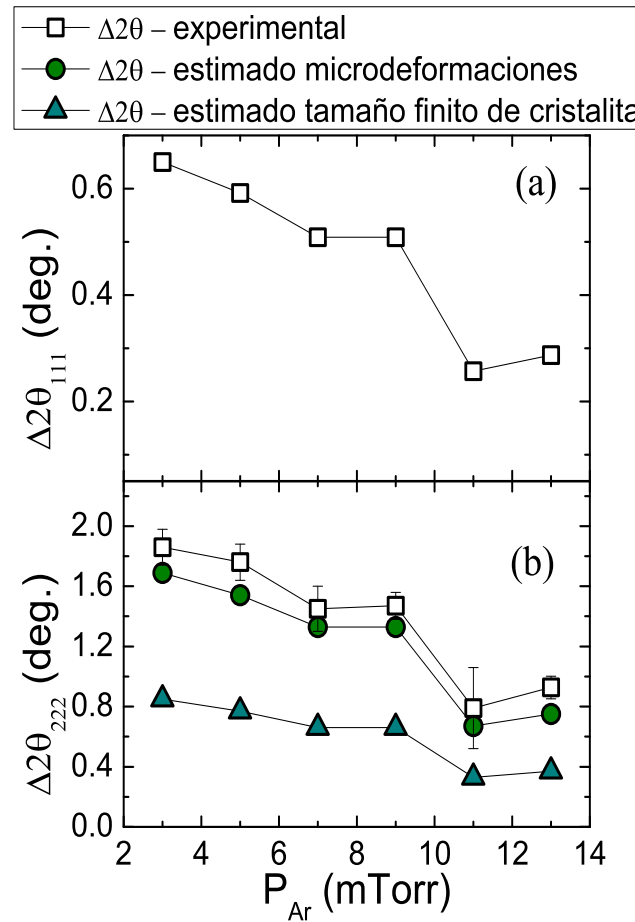


Figura 4.5: Ancho a altura mitad para la reflexión (a) (111) y (b) (222) en función de P_{Ar} (cuadrados) y estimación del ensanchamiento debido a microdeformaciones (círculos) o debido al tamaño finito de las cristalitas (triángulos).

Para determinar cuál de las dos contribuciones domina el ancho medido, en la Fig. 4.5 graficamos el ancho a altura mitad de los picos (111) y (222) junto con la estimación del ancho $\Delta 2\theta_{222}$ calculado para los casos de tamaño finito y microdeformaciones. Si sólo tomamos en consideración el primero, vemos que predice valores mucho más pequeños que los medidos experimentalmente. En el caso de microdeformaciones, lo estimado

se ajusta mejor a los datos experimentales. Si las microtensiones dominan, es posible a partir de la Ec 4.1, extraer un valor para la relación entre la dispersión Δd_{111} y la distancia interplanar, encontrando que esta decrece de $\Delta d_{111}/d_{111} \sim 0.011$ para $P_{Ar} = 3$ mTorr a $\Delta d_{111}/d_{111} \sim 0.004$ para $P_{Ar} = 13$ mTorr.

Una forma alternativa de separar los efectos de tamaño de grano y microdeformaciones, es realizando un diagrama de Williamson-Hall [107]. Brevemente, este método consiste en aprovechar la diferencia en la dependencia angular entre ambas contribuciones. Para formas de línea lorentzianas se cumple que:

$$\frac{\pi}{2} \Delta 2\theta \cos \theta = \frac{K \lambda_{Cu}}{d_{crist}} + 4 \frac{\Delta d}{d} \sin \theta. \quad (4.2)$$

Usando esta relación, es posible hacer un ajuste lineal del ancho total de cada pico $\Delta 2\theta \cos \theta$ en función de $\sin \theta$ y estimar el tamaño de cristalita y el efecto de las microdeformaciones de la ordenada y la pendiente, respectivamente. A partir de estos ajustes también encontramos que el efecto dominante en el ensanchamiento es producto de las microdeformaciones y que el tamaño de la cristalita se mantiene aproximadamente constante a lo largo de las muestras, con un valor medio de $\langle d_{crist} \rangle \sim 34(9)$ nm. Es importante recordar que en el caso de difracción de rayos-X, si la muestra presenta una distribución en el tamaño de grano, los más grandes contribuyen con mayor intensidad que los más pequeños, por lo que d_{crist} debe interpretarse como una cota superior del tamaño promedio.

4.3.2. Figura de polos y tensiones residuales por el método $\sin^2 \psi$

Una de las potenciales contribuciones a la anisotropía magnética perpendicular es la anisotropía magnetocristalina. Este efecto surge de la orientación cristalina preferencial de los granos en la dirección [111], que es un eje de fácil magnetización para FePt en la fase A1. Si no consideramos efectos de tensiones, se espera que una película delgada metálica fcc minimice la energía de interfaz/superficie favoreciendo el crecimiento de granos con orientación cristalina (111) perpendicular al plano. En la sección anterior se ha discutido la evolución de la textura cuando cambia la deformación en las muestras y se analizó la relación entre las intensidades de los picos de difracción (111) y (200). Ese estudio tiene valor comparativo, por lo que es interesante hacer una caracterización de la textura de al menos una de las muestras.

Las figuras de polos construidas a partir de experimentos de difracción de rayos-X nos brindan información de la distribución angular de la textura, fuera y dentro del plano (ángulos χ y ϕ respectivamente, Fig. 4.6). En este tipo de experimentos el ángulo 2θ se mantiene fijo, de manera tal que se analiza una familia de planos para cada gráfico,

y se rota la muestra según dos ángulos polares, el radial χ y acimutal ϕ (ver esquema de la Fig. 4.6). Para estas medidas utilizamos el método de Schultz [55, 108], el cual requiere de un difractómetro de rayos-X con un goniómetro de texturas. A tal efecto se utilizó el difractómetro PANalytical Empyrean y una cuna de Euler que permite girar la película en los tres ángulos que se muestran en la Fig. 4.6 de forma independiente. Este equipo está disponible en el Laboratorio de Ciencias de Materiales en el Centro Atómico Bariloche.

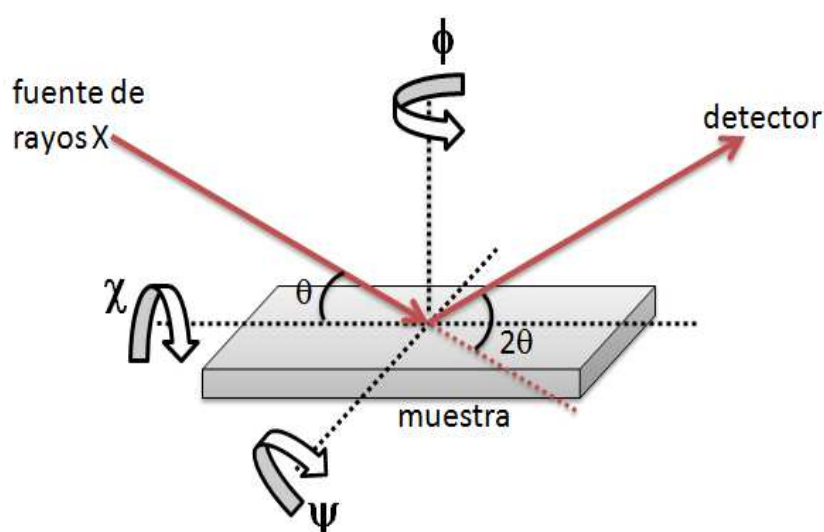


Figura 4.6: Geometría para la medición de texturas y tensiones. En el primer caso, θ se mantiene fijo en la máxima intensidad de una reflexión dada y para cada valor del ángulo χ ($0^\circ \leq \chi \leq 75^\circ$) se realiza un barrido de 360° en ϕ , con un paso de 1° y 5° , respectivamente. Para las medidas de tensiones, se fija $\chi = 0$ y se realizan barridos $\theta - 2\theta$ convencionales para diferentes valores, tanto positivos como negativos, del ángulo de inclinación ψ .

Con este objetivo medimos una figura de polos de la muestra $P_{Ar} = 3$ mTorr (ver Fig. 4.7) para las reflexiones (111), (200), (220) y (311). Cada punto en la figura de polos es la proyección estereográfica de una dirección hkl particular (llamada polo), por ejemplo, la dirección [111]. También mostramos en la Fig. 4.7 (b) una figura de polos calculada a través de una simulación de la función distribución de orientaciones (ODF) para una muestra teórica con la dirección [111] paralela a la normal al plano, pero permitiendo que la dirección cristalográfica $\langle 111 \rangle$ pueda apartarse de la perpendicular al plano del film $\pm 3^\circ$. La ODF asocia una probabilidad para cada orientación cristalográfica, lo que nos permite reproducir una figura de polos teórica de una dirección determinada, o la composición de varias. Este es un cálculo numérico, realizado a través de la herramienta en Matlab para el análisis cuantitativo de texturas cristalográficas MTEX - Toolbox for Quantitative Texture Analysis [109].

Como se esperaba, la reflexión asociada a la dirección [111] es muy intensa entre

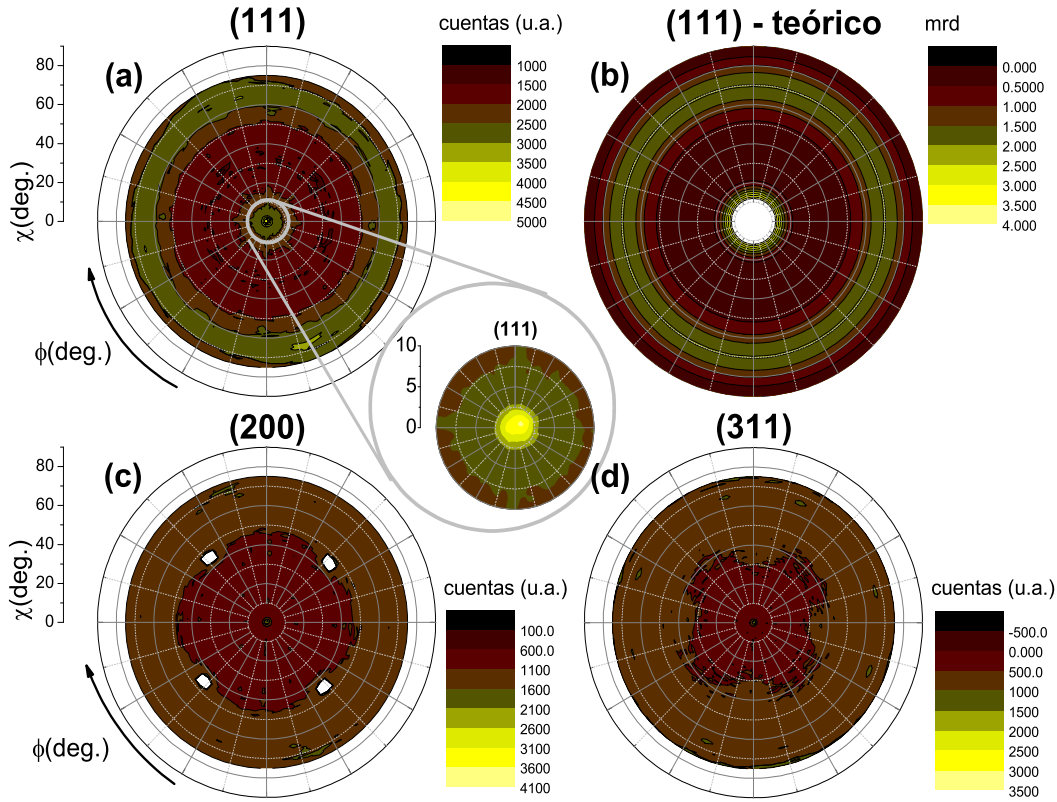


Figura 4.7: Figuras de polos para la muestra FePt 3 mTorr correspondientes a las reflexiones (polos) (a) (111), (c) (200) y (d) (311). El ángulo χ se representa en forma radial y el ángulo ϕ en forma polar. La figura central corresponde a una ampliación de la figura de polos (111) para $\chi < 10^\circ$. En (b) se presenta la figura de polos calculada a través de una simulación numérica de una muestra teórica con la dirección [111] normal a la superficie. Las unidades en (b) están expresadas en “veces *random*” donde 1 es la intensidad para una muestra isotrópica (es decir, un polvo no orientado) donde todas las orientaciones tienen la misma probabilidad de existir, mientras que valores > 1 representan una alta probabilidad de encontrar dicha dirección cristalina alineada en esa orientación. En la figura (c) los puntos donde satura la escala corresponden a la contribución de la reflexión Si(220).

0° y 3° y luego decrece rápidamente, lo que indica que es, en efecto, una orientación cristalina preferencial cercana a la normal al plano de la película. En las figuras de polos (200) y (220)², correspondientes a las reflexiones $2\theta_{\text{FePt}(200)} \sim 47.6^\circ$ y $2\theta_{\text{FePt}(220)} \sim 69.7^\circ$, también se encuentran presentes contribuciones del sustrato de silicio provenientes de las reflexiones $2\theta_{\text{Si}(220)} \sim 47.3^\circ$ y $2\theta_{\text{Si}(400)} \sim 69.1^\circ$. Estas son fácilmente identificables dado que el sustrato es monocristalino y es representado en la figura de polos como puntos discretos, mientras que la naturaleza policristalina de las películas de FePt da como resultado un anillo. A pesar de que la reflexión del FePt (311) se observa con

²La medición correspondiente a la reflexión (220) no se muestra en la Fig. 4.7. También fue medida y resulta en un pico de baja intensidad en $\chi = 0^\circ$ y una distribución isotrópica en el plano, similar a la figura de polos (311).

relativa intensidad cerca de $\chi = 0^\circ$, indicando que en un cierto número de granos la dirección $[311]$ es perpendicular al plano, esta es mucho menos intensa que la reflexión (111) .

En resumen, podemos ver que la muestra es policristalina y que una gran proporción de los granos se encuentran orientados con la dirección cristalográfica $\langle 111 \rangle$ perpendicular al plano de la muestra, con una dispersión $\lesssim 5^\circ$ de forma isotrópica en el plano de la película. La naturaleza policristalina se observa claramente en la Fig. 4.7 (a) en donde aparece un anillo de mayor intensidad en un ángulo $\chi \sim 67^\circ$, correspondiente a otras direcciones de la familia $\langle 111 \rangle$. En lugar de los puntos discretos que se esperan para una muestra monocristalina, estas direcciones se distribuyen al azar dentro del anillo, manteniendo la alineación de una dirección $\langle 111 \rangle$ con la normal de la muestra. También hay que notar que la simulación a través de la ODF ideal en la Fig. 4.7 (b) es similar a la medición de la figura de polos (111) , es decir, predice máximos de intensidad a ángulos $\chi \sim 67^\circ$ y $0^\circ \lesssim \chi \lesssim 5^\circ$, confirmando que existe una gran cantidad de granos con su eje $[111]$ apuntando en dirección cercana a la normal al plano del film.

Para cuantificar las tensiones residuales, se hicieron medidas en algunas muestras seleccionadas usando el método $\sin^2 \psi$ [110, 111] que es empleado habitualmente para calcular el grado de deformación en películas delgadas. Esta técnica consiste en realizar series de difractogramas $\theta - 2\theta$ alrededor de un pico de difracción (Fig. 4.8(a)) para diferentes ángulos de inclinación ψ tanto positivos como negativos, de forma tal que $0^\circ \leq |\psi| \leq 33.21^\circ$, para tres orientaciones de la muestra en $\phi = 0^\circ, 45^\circ$ y 90° (los ángulos ϕ y ψ se esquematizan en la Fig. 4.6). Con la posición del máximo de intensidad del pico para cada ψ en una dada orientación ϕ , se grafica la distancia interplanar $d_{\phi\psi}$ en función del $\sin^2 \psi$. Ajustando los difractogramas con curvas lorentzianas, obtuvimos las posiciones de los picos de difracción (311) y luego las distancias interplanares. Encontramos que el desdoblamiento entre los valores positivos y negativos de ψ es despreciable, por lo que se supone un comportamiento lineal de d_{311} vs. $\sin^2 \psi$ (Fig. 4.8(b)). Esto significa que no existen tensiones de corte apreciables con componentes en la dirección normal z a la película, lo que es de esperar en el caso de una película delgada [54].

Por razones experimentales, usamos el pico de difracción (311) ya que el ángulo relativamente alto de esta reflexión nos permite llegar a valores más grandes de ψ . Al mismo tiempo, dado que esta reflexión se encuentra en ángulos altos, su intensidad es relativamente baja. Esta es la causa de las barras de error que se pueden ver en la Fig. 4.8 (b).

Una de las desventajas de este método es que consume tiempos de medición considerablemente extensos. Debido a la limitada disponibilidad del equipo, solamente fue posible realizar medidas en tres muestras representativas con $P_{Ar} = 3, 5$

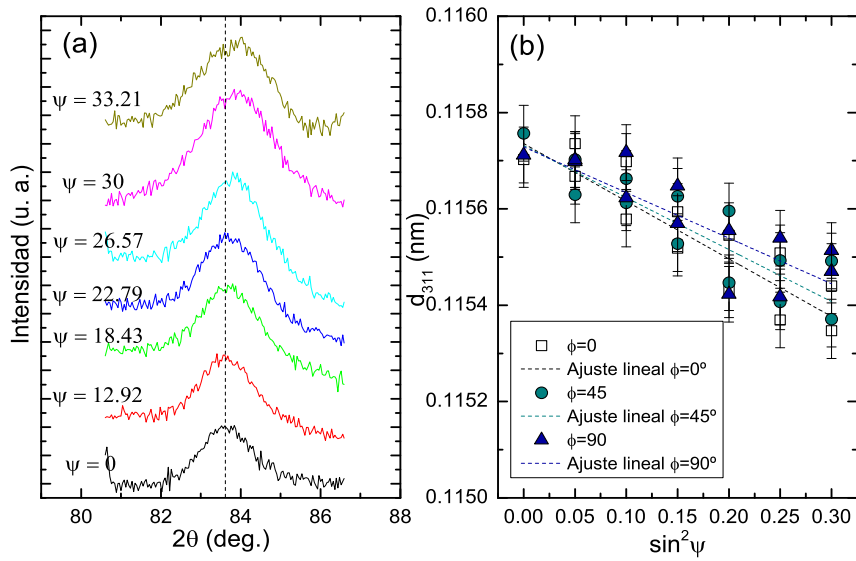


Figura 4.8: (a) Difractogramas de rayos-X para la reflexión (311) en la muestra FePt 3 mTorr - 100 nm. Cada barrido corresponde a un ángulo de inclinación ψ diferente. La línea punteada sirve de referencia para hacer más claro el pequeño corrimiento en la posición del máximo del pico de difracción. (b) Distancia interplanar d_{311} en función de $\sin^2 \psi$ calculada a partir de la posición de los picos de difracción, para tres posiciones angulares ϕ de la muestra.

y 13 mTorr. De todas formas hemos visto que los resultados son consistentes con las medidas previamente realizadas, encontrando un cambio en el comportamiento entre las muestras de 5 y 13 mTorr.

En esta situación, el tensor de deformaciones en el sistema de coordenadas de la muestra \mathbf{S}_i (Fig. 4.9) está dado por:

$$\varepsilon_{ij} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & 0 \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33} \end{pmatrix}. \quad (4.3)$$

Las componentes de este tensor se relacionan con las distancias interplanares de la muestra para una orientación ϕ y un ángulo de inclinación ψ , por [54]:

$$\frac{d_{\phi\psi} - d_0}{d_0} = (\varepsilon_{11} \cos^2 \phi + \varepsilon_{12} \sin 2\phi + \varepsilon_{22} \sin^2 \phi - \varepsilon_{33}) \sin^2 \psi + \varepsilon_{33}, \quad (4.4)$$

donde ε_{ij} son las componentes del tensor deformación (Ec. 4.3) y d_0 es la distancia interplanar en el caso de una muestra completamente relajada. Los índices “33” indican la dirección perpendicular, mientras que los subíndices “11” y “22” indican direcciones ortogonales contenidas en el plano. Con esta notación, ε_{ij} indica la contribución en \hat{S}_i producto de una deformación que ocurre en \hat{S}_j (ver Fig. 4.9).

Para aplicar esta ecuación es necesario conocer d_0 . Si se supone que no hay tensiones

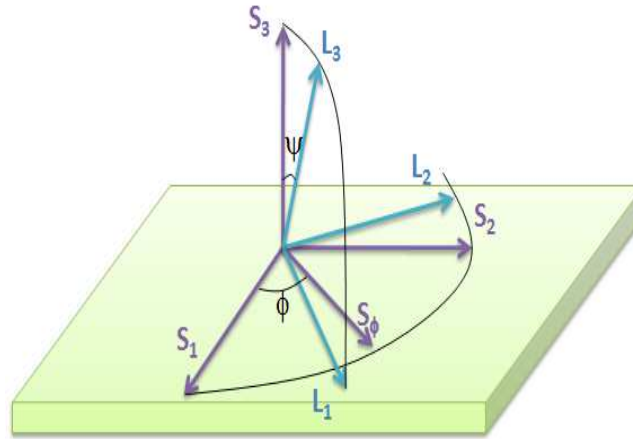


Figura 4.9: Sistema de coordenadas del laboratorio (**L**) y de la muestra (**S**).

de corte ($\varepsilon_{12} = 0$) y que las muestras son isotrópicas dentro del plano ($\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22}$, lo cual puede deducirse de la Fig. 4.7), la dependencia en ϕ desaparece, y la Ec. 4.4 se simplifica:

$$d_\psi \approx (\varepsilon_{11} - \varepsilon_{33})d_0 \sin^2 \psi + (1 + \varepsilon_{33})d_0 = -\frac{\nu + 1}{2\nu} \varepsilon_{33} d_0 \sin^2 \psi + (1 + \varepsilon_{33})d_0. \quad (4.5)$$

en donde usamos que para tensiones biaxiales las deformaciones en el plano ε_{11} y fuera del plano ε_{33} se relacionan mediante el coeficiente de Poisson, de la forma: $\varepsilon_{11} = \frac{\nu-1}{2\nu} \varepsilon_{33}$. Para cada una de las muestras medidas, FePt 3, 5 y 13 mTorr, se calculó un parámetro de red d_0 del ajuste lineal de d_{311} vs. $\sin^2 \psi$ (Ec. 4.5), usando como aproximación de primer orden el valor reportado para el módulo de Poisson $\nu_{\text{FePt}} = 0.33$ [13, 26, 70].

Con esta estimación inicial para d_0 , podemos ajustar los datos $\frac{d_\psi - d_0}{d_0}$ vs. $\sin^2 \psi$ usando la Ec. 4.4 para calcular las deformaciones ε_{ij} (Fig. 4.8(b)). De la ordenada al origen promedio calculamos la deformación en la dirección normal ε_{33} y de las pendientes de los ajustes para $\phi = 0^\circ, 45^\circ$ y 90° se calculan las deformaciones: ε_{11} , ε_{22} y ε_{12} . Notar que en este paso ya no estamos forzando las aproximaciones de isotropía y tensiones de corte igual a cero.

El cálculo de las tensiones a partir de las deformaciones es directo. Los valores de las tensiones en el sistema de coordenadas de la muestra (\mathbf{S}_i , Fig. 4.9) puede calcularse usando la forma general de la ley de Hooke:

$$\varepsilon_{ij} = S_{ijkl} \sigma_{kl}, \quad (4.6)$$

donde S_{ijkl} es la inversa del tensor de tensiones C_{ijkl} , y se lo conoce como tensor de compliancia. Para el caso general de un material isotrópico, esta relación toma la forma [112]:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1 + \nu}{E} \sigma_{ij} - \delta_{ij} \frac{\nu}{E} \sigma_{kk}, \quad (4.7)$$

donde E es el módulo de Young, ν el coeficiente de Poisson y σ_{ij} las tensiones en el plano en las direcciones $x - y$ del sistema de referencia de la muestra (\mathbf{S}_i , Fig. 4.9). Sin pérdida de generalidad, podemos asumir que la tensión en la dirección normal es cero, ya que una película delgada uniforme es libre para expandirse y contraerse en la dirección normal, y también las tensiones de corte con una componente en esta dirección son nulas [110]. Con estas suposiciones, las ecuaciones elásticas (Ec. 4.7) para el caso de tensiones biaxiales toman la forma:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{11} &= \frac{1}{E} (\sigma_{11} - \nu \sigma_{22}) \\ \varepsilon_{22} &= \frac{1}{E} (\sigma_{22} - \nu \sigma_{11}) \\ \varepsilon_{33} &= -\frac{\nu}{E} (\sigma_{11} + \sigma_{22}) \\ \varepsilon_{12} &= \frac{1+\nu}{E} \sigma_{12}, \end{aligned} \quad (4.8)$$

Dentro de nuestro conocimiento, el módulo de Young para películas delgadas de FePt en la fase desordenada A1 no ha sido reportado. En los últimos años, algunos autores [26, 70] publicaron un valor para el módulo de Young a temperatura ambiente $E_{\text{FePt}} = 180$ GPa. Sin embargo, en los trabajos no se discute el método por el cual se llega a este valor. Mediciones anteriores [72] en la fase ordenada reportan $E_{\text{FePt-L1}_0} = 150$ GPa. Usando la técnica de lámina vibrante en un tira de FePt cortada del blanco (tanto el experimento como los resultados se detallan en el Apéndice, sección A.2), llegamos a un valor de $E_{\text{FePt}} = 165(10)$ GPa, también a temperatura ambiente. Como se discute en el Apéndice, las medidas magnéticas y de difracción de rayos X dan como resultado que el blanco se encuentra, al menos parcialmente, en la fase L1₀. En el caso de FePd, el valor de E decrece $\sim 20\%$ cuando se pasa a la fase desordenada [73]. Si suponemos que el blanco se encuentra completamente en la fase L1₀, es posible estimar un valor final de $E_{\text{FePt}} = 130(10)$ GPa para la fase desordenada.

La Ec. 4.8 consiste de cuatro ecuaciones con cuatro incógnitas: las tres tensiones σ_{ij} y ν . Con este nuevo valor para el coeficiente de Poisson podemos volver a la Ec. 4.5 y aplicar un proceso iterativo: recalculamos d_0 que a su vez nos permite calcular la deformación ε_{ij} a través de la Ec. 4.4. Continuamos iterando hasta que el valor de ν se encuentre dentro del error de la iteración anterior.

En la Fig. 4.10 se presentan los valores finales de las tensiones en las tres películas seleccionadas para este estudio. Es claro que las muestras se encuentran bajo tensiones biaxiales de compresión en el plano a bajas presiones de Ar, cambiando a expansión para $P_{\text{Ar}} = 13$ mTorr.

Notar que la tensión de corte en el plano σ_{12} es aproximadamente un orden de magnitud más pequeña que las tensiones en el plano σ_{11} y σ_{22} . Además, las tensiones en

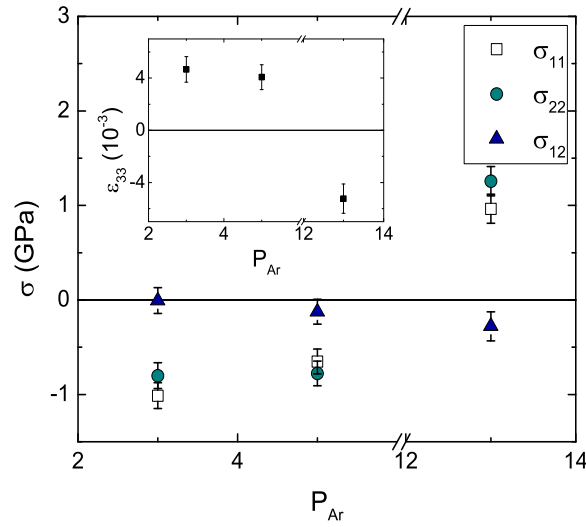


Figura 4.10: Tensiones residuales en función de la presión de Ar. Las muestras con $P_{Ar} = 3$ y 5 mTorr se encuentran sometidas a tensiones de compresión dentro del plano, pero a medida que se incrementa P_{Ar} las tensiones se relajan y cambian de signo, pasando a ser de expansión. En el recuadro se presenta la deformación ϵ_{33} , mostrando a su vez el cambio de expansión a compresión.

el plano toman valores similares entre sí, dentro del error experimental. Estos resultados se encuentran en muy buen acuerdo con las suposiciones que realizamos para obtener el valor de la distancia interplanar libre de tensiones d_0 : isotropía en el plano y tensión de corte nula. Por último, calculamos el valor medio del módulo de Poisson usando los resultados para las tres muestras $\nu_{FePt-A1} \sim 0.34(3)$ y el valor de $d_{0-311} = 0.11509(5)$ nm para $P_{Ar} = 3$ y 5 mTorr y $d_{0-311} = 0.11676(5)$ nm para $P_{Ar} = 13$ mTorr, ambos en excelente acuerdo con el valor inicial.

Los resultados de esta caracterización estructural se ajustan a reportes recientes en películas delgadas metálicas en general [113–115] y de FePt $L1_0$ en particular [116], los cuales muestran que un aumento en P_{Ar} resulta en un cambio en la morfología superficial de la película, debido a un bombardeo (“*resputtering*”) mayor durante el proceso de crecimiento. Cuando llegan a la superficie del sustrato, los átomos depositados a bajas presiones de Ar tienen una movilidad mayor, promoviendo la formación de películas más densas bajo tensiones de compresión. Cuando se incrementa P_{Ar} , el número de colisiones de los átomos bombardeados y reflejados se incrementa, bajando la movilidad en la superficie del sustrato y afectando significativamente la cinética de crecimiento. También hay que considerar que el incremento en el número de colisiones a medida que aumenta la presión del gas en la cámara, puede causar que los átomos lleguen al sustrato en ángulos oblicuos [117] resultando en un efecto de “self-shadowing” en los átomos incidentes por aquellos ya depositados. Esto da origen a un crecimiento columnar más marcado

[118], favoreciendo la textura.

4.4. Medidas Magnéticas

La caracterización morfológica y estructural que describimos en la sección anterior nos indica que conseguimos exitosamente controlar el grado y régimen (compresivo o expansivo) de las tensiones residuales en los films. Ahora nos enfocamos en el análisis del comportamiento magnético. En particular, nos interesa estudiar la contribución a la anisotropía magnética perpendicular K_{\perp} de la anisotropía magnetoelástica K_{ME} y la anisotropía magnetocristalina K_{MC} a través de la textura. Para ello realizamos una serie de mediciones de magnetización DC, de microscopía AFM/MFM y de resonancia ferromagnética.

4.4.1. Magnetización DC y medidas de microscopía magnética

Existe una correspondencia directa entre la forma del lazo de histéresis y la configuración de dominios magnéticos. En particular, las películas delgadas con dominios en *stripes* muestran características comunes en las curvas de magnetización en el plano. Algunas de las más destacables son: [18, 44]

i.- La magnetización crece de forma aproximadamente lineal desde la remanencia hasta el campo de saturación $H_{s\parallel}$. Esta región lineal se asocia a la rotación de la componente de la magnetización fuera del plano para alinearse en la dirección del campo magnético externo, H . Cuando se pierde la estructura en tiras, la región lineal también desaparece. A su vez, $H_{s\parallel}$ varía con el espesor, siguiendo la relación:

$$H_{s\parallel} = H_{s\perp} \left[1 - \frac{d_{cr}(Q)}{d\sqrt{1+Q}} \right], \quad (4.9)$$

donde $H_{s\perp} = 2K_{\perp}/M_s$ es el campo de saturación para el caso de campo externo aplicado en dirección normal a la película. En la Ec. 4.9 se enfatiza el hecho de que tanto el campo de saturación paralelo como el espesor crítico son factores que dependen del factor de calidad.

ii.- El valor del campo coercitivo H_{coer} también depende de la configuración magnética. Se espera que, debido al incremento de paredes de dominio, H_{coer} aumente abruptamente en la transición de dominios planares a *stripes* para luego decrecer suavemente. Además, en películas con *stripes*, la magnetización de remanencia disminuye en las curvas de histéresis con campo externo en la dirección del plano, lo que implica que la componente perpendicular de la magnetización es cada vez mayor.

iii.- Como se explica en la sección 1.3.2, el período λ_s de los *stripes* depende de Q .

Murayama propuso un modelo analítico [44], llamado Modelo III en el trabajo original, del cual dedujo la ecuación 1.15, válida para el caso $Q \rightarrow 0$:

$$\frac{\lambda_s}{2} = \left[\frac{(2\pi)^2 d^2 A}{2\pi M_s^2} \left(1 + \frac{1}{Q} \right) \right]^{1/4},$$

donde A es la constante de intercambio. Se ha reportado [1] que el valor de la constante de intercambio es relativamente independiente del grado de orden químico, dando un valor de $A \sim 0.95 \times 10^{-6}$ erg/cm en el compuesto equiatómico. Para estimar un valor para nuestras películas, en las cuales la composición no es exactamente la estequiométrica, se midió una curva de magnetización vs temperatura en una película de 94 nm de espesor y composición aproximada Fe/Pt 45/55 y encontramos una temperatura de Curie $T_C = 500$ K, considerablemente más pequeña que la temperatura de la aleación estequiométrica $T_C \sim 750$ K. Esta diferencia baja el valor de la constante de intercambio, por lo que se estima que $A \sim 0.6 \times 10^{-6}$ erg/cm [18] para nuestros films. De todas formas, la constante de intercambio entra en la Ec. 1.15 como $A^{1/4}$, por lo que no es determinante en la estimación final del semiperíodo.

3

En la Fig. 4.11 se muestran las curvas de magnetización M vs. H con el campo externo orientado de forma paralela al plano de la película, junto con su correspondiente imagen MFM. Recordar que la punta del AFM/MFM se encuentra magnetizada a lo largo del eje, por lo que detecta la componente perpendicular del gradiente del campo disperso, es decir, es mayormente sensible a la magnetización normal al plano de la muestra. Todas las imágenes MFM fueron tomadas en el estado remanente ($H = 0$) luego de saturar las muestras fuera del microscopio con un campo de 5 kOe.

Para bajas presiones de Ar (3 y 5 mTorr) las imágenes MFM revelan una estructura de *stripes* relativamente ordenados y paralelos. Las correspondientes curvas de magnetización exhiben claramente las características *i*- y *ii*- descritas anteriormente para películas con dominios en tiras. En las muestras fabricadas a $P_{Ar} = 7$ y 9 mTorr ya pueden observarse algunos cambios. En primer lugar, los *stripes* comienzan a perder su paralelismo y sumado a esto el contraste magnético es menor, indicando una reducción en la componente fuera del plano de la magnetización. En estas dos muestras vemos también que las curvas de magnetización comienzan gradualmente a tomar una forma más cuadrada, es decir, aumenta la relación M_{rem}/M_s y disminuyen los campos coercitivo y de saturación. En particular, la muestra $P_{Ar} = 9$ mTorr presenta una curva de histéresis muy similar a la correspondiente a muestras con dominios completamente en el plano. Esto indica que

³Notar, sin embargo, que existen reportes recientes [17] que indican que la temperatura de Curie de la fase A1 es relativamente independiente del contenido de Pt, a diferencia de lo que ocurre en la fase L1₀.

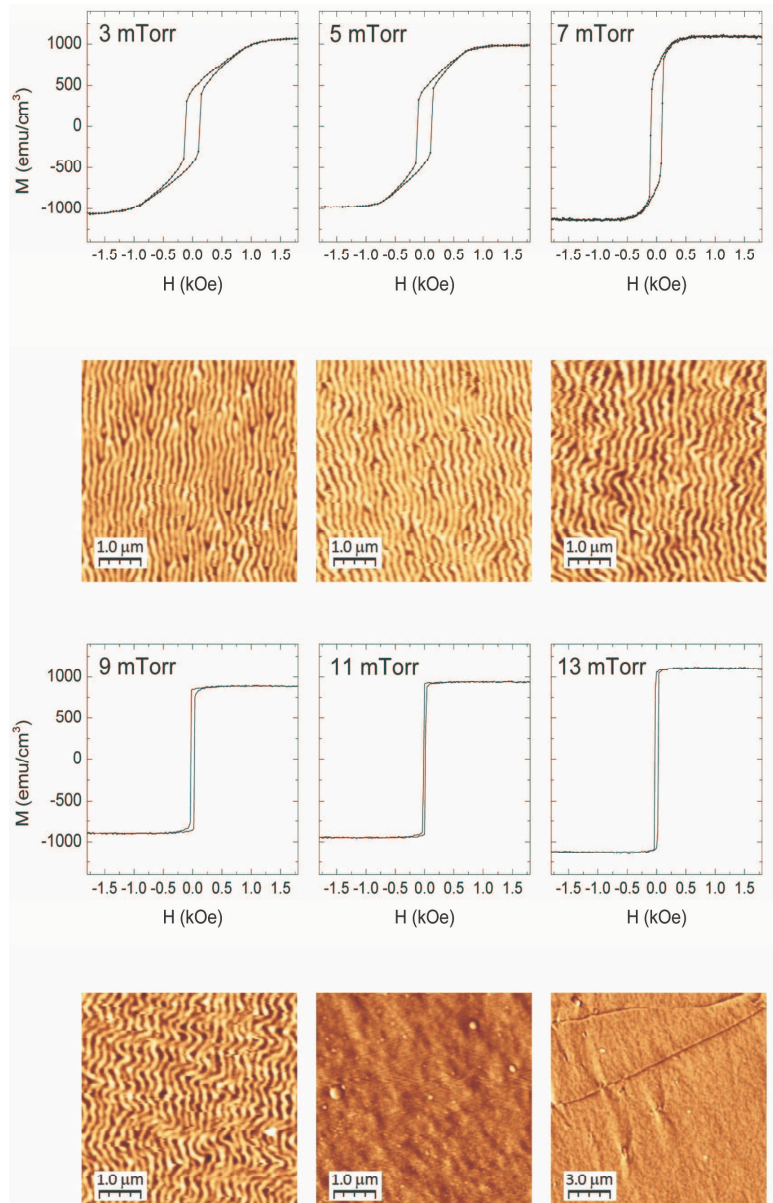


Figura 4.11: Curvas de magnetización DC para las seis muestras de esta serie y sus correspondientes imágenes de MFM. Las imágenes de MFM muestran que la transición de dominios magnéticos en tiras a planar ocurre entre las muestras de 9 y 11 mTorr. En el caso $P_{Ar} \geq 11$ mTorr la magnetización se encuentra en el plano del film, por lo que el contraste en la imagen solo puede apreciarse en las paredes de dominio.

en este caso, el d_{cr} se encuentra cercano a los 100 nm de espesor.

De las curvas de la Fig. 4.11 también es posible extraer la magnetización de saturación M_s , el campo coercitivo H_{coer} , la magnetización de remanencia M_{rem} , el factor de cuadratura M_{rem}/M_s y el semiperíodo de los *stripes* $\lambda_s/2$ (ver Fig. 4.12). Se estimó un valor promedio de la magnetización $M_s = 1050(60)$ emu/cm³, cercano al valor reportado para el volumen [119] $M_{s-FePt} \sim 1100$ emu/cm³. El período de los *stripes* fue determinado de forma directa de las imágenes MFM utilizando la función

transformada rápida de Fourier 2D (2D-FFT) del software WSxM [120].

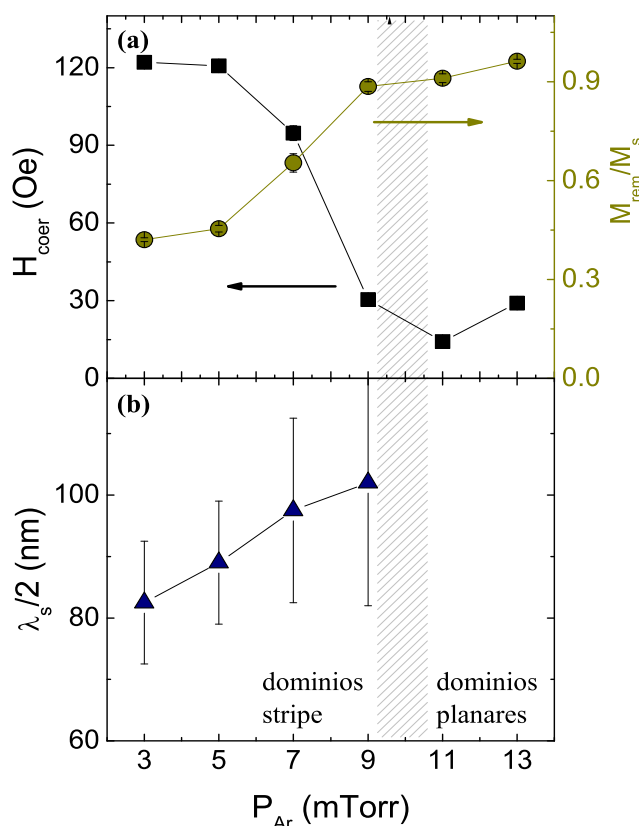


Figura 4.12: (a) Campo coercitivo H_{coer} , factor de cuadratura M_{rem}/M_s y (b) semiperíodo $\lambda_s/2$ de los *stripes* en función de P_{Ar} . De acuerdo con las imágenes MFM, la transición entre dominios tipo *stripes* y planares debe ocurrir entre $9 \lesssim P_{Ar} < 11$ mTorr (región sombreada).

Previamente discutimos las características distintivas de las curvas de histéresis, las cuales nos permiten reconocer fácilmente el tipo de estructura magnética de las películas. Sin embargo, dado que la transición entre ambas configuraciones es gradual, cuando nos acercamos al espesor crítico es necesario hacer una medición directa, del tipo MFM, para confirmar la presencia de los *stripes*. Por esta razón, en la Fig. 4.12 representamos la transición por una banda sombreada. Notar además que λ_s aumenta con P_{Ar} , lo que, según la Ec. 1.15, pareciera indicar una disminución en el valor de Q . En la sección siguiente realizamos un estudio de la correlación entre la presión de argón, la anisotropía perpendicular y el factor de calidad, por lo que discutiremos con más detalle este comportamiento.

4.4.2. Determinación de la anisotropía perpendicular

Existe una variedad de métodos para la estimación de la componente perpendicular de la anisotropía K_{\perp} . Para comenzar, podemos hacer uso de nuestro conocimiento de

las características estructurales estudiadas en la sección 4.3 para estimar la componente debida a efectos magnetoelásticos K_{ME} . En el caso de películas sometidas a tensiones biaxiales, es posible calcular K_{ME} utilizando la posición del pico FePt(111) en los difractogramas de la Fig. 4.3 y la relación: [19, 30]

$$K_{ME} = \frac{3}{2}\lambda\sigma_x = \frac{3}{2}\lambda E \frac{\varepsilon_z}{2\nu}, \quad (4.10)$$

donde λ es el coeficiente de magnetostricción promedio para FePt y ε_z es la deformación en la dirección normal a la película. En la sección 4.3.2 calculamos valores para la deformación en la dirección z con el método $\sin^2\psi$. Como obtuvimos resultados similares a los estimados simplemente por el desplazamiento de la distancia interplanar d_{111} , en el resto de las películas estimamos la deformación en z a través de la relación $\varepsilon_z = \varepsilon_{33} = d_{111}/d_{0-111} - 1$.

Para la estimación de K_{ME} utilizamos como distancia interplanar libre de tensiones el valor medio de los valores calculados en la Sección 4.3.2, $d_{0-111} \sim 0.22047(10)$ nm, $E_{FePt} = 130$ GPa y el valor reportado [13, 26, 70] para el coeficiente de Poisson $\nu_{FePt} = 0.33$, coincidente con lo estimado en la sección 4.3.2. El coeficiente de magnetostricción en materiales $L1_0$ es, en general positivo, pero existe una gran variedad de valores reportados. En películas de FePt Aboaf et.al. [66] estimaron $\lambda = 70 \times 10^{-6}$ y Spada et.al. [13] $\lambda = 34 \times 10^{-6}$. Existe también un trabajo no publicado de espectroscopía de absorción de rayos-X para películas en la fase desordenada [121] en el cual se llega al resultado $\lambda_{100} \sim 100 \times 10^{-6}$ y $\lambda_{111} \sim 250 \times 10^{-6}$. En películas de FePd los valores de magnetostricción varían en un rango de [41] $\lambda = 65 \times 10^{-6}$ a $\lambda = 250 \times 10^{-6}$ [67]. Debido a la gran disparidad de valores para la magnetostricción y suponiendo que no depende de P_{Ar} , en la estimación de la anisotropía magnetoelástica utilizamos un valor promedio de $\langle\lambda\rangle \sim 100 \times 10^{-6}$, el cual tiene por supuesto una incertidumbre considerable. De todas formas, este valor es solo un factor de escala y no afecta la evolución de K_{ME} con P_{Ar} . En la Fig. 4.13 (a) graficamos K_{ME} en función de P_{Ar} y agregamos una escala en la parte derecha del gráfico con el factor de calidad resultante si se supone que $Q = K_{ME}/(2\pi M_s^2)$. Notar que la constante de anisotropía magnetoelástica es positiva para $P_{Ar} \leq 9$ mTorr, lo que implica una contribución que tiende a sacar a la magnetización fuera del plano, comportamiento que se revierte para $P_{Ar} \geq 11$ mTorr.

La anisotropía efectiva en una película puede ser estimada [122] de la curva de magnetización perpendicular al plano de la película, usando la relación $K_{eff} = H_{s\perp} M_s/2$, donde $H_{s\perp}$ es el campo de saturación perpendicular. También puede calcularse de la diferencia entre las áreas del primer cuadrante de las medidas M vs. H normalizadas (Fig. 4.14), para el caso paralelo y perpendicular al plano: $A_{\parallel} - A_{\perp} = H_{s\perp}/2 = K_{eff}/M_s$. De estas medidas calculamos los valores de anisotropía presentados en la Fig. 4.13(b), a través de la relación $K_{\perp} = 2\pi M_s^2 - K_{eff}$. El error

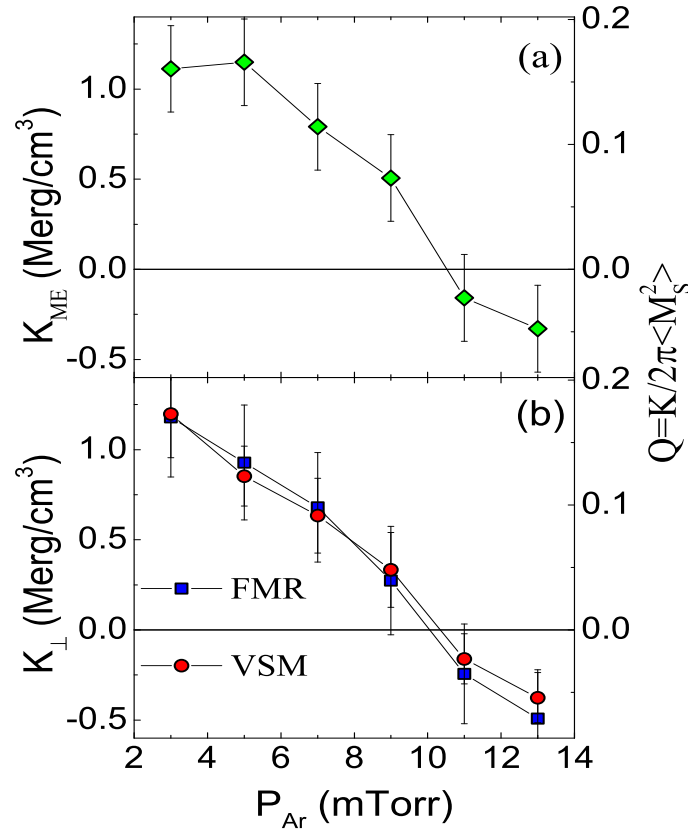


Figura 4.13: Anisotropía magnetoelástica (a) y perpendicular (b) como función de P_{Ar} . K_{ME} fue estimada a través de la distancia interplanar d_{111} presentada en la Fig. 4.4 (b) y la Ec. 4.10. K_{\perp} fue estimada de las curvas de magnetización tomadas con campo paralelo y perpendicular al plano de la película (VSM) y de resonancia ferromagnética (FMR). El factor de calidad $Q = K_{\perp} / (2\pi \langle M_s \rangle^2)$ es válido solo en el caso positivo.

relativamente grande en K_{\perp} es debido a pequeñas desalineaciones de la normal a la película con H y a la dificultad de determinar con precisión $H_{s\perp}$. El método de las áreas en general da como resultado valores un poco mayores de la anisotropía, quizás debido a un apartamiento del comportamiento tipo Stoner-Wohlfarth de las curvas M vs. H (Figs. 4.11 y 4.14) o a efectos de anisotropía rotacional [18] que no han sido considerados en este análisis. En ambos casos, la anisotropía perpendicular magnética, al igual que la magnetoelástica, decrecen a medida que aumenta P_{Ar} . Esta tendencia parece contradecir los resultados presentados en la Fig. 4.4(a), que muestran un aumento en la textura (111) para valores mayores de P_{Ar} . Dado que la dirección [111] es un eje de fácil magnetización magnetocristalina, se esperaría un incremento en K_{\perp} para las muestras con mayor P_{Ar} . De todas formas, la textura ya en la muestra $P_{Ar} = 3$ mTorr es considerable ($(I_{111}/I_{200})_{\text{película}} / (I_{111}/I_{200})_{\text{aleatorio}} \sim 10$) y no se espera que el aumento de textura para mayores valores de P_{Ar} modifique en forma significativa una eventual contribución magnetocristalina a K_{\perp} .

Otra forma de calcular la anisotropía magnética es utilizando la técnica de

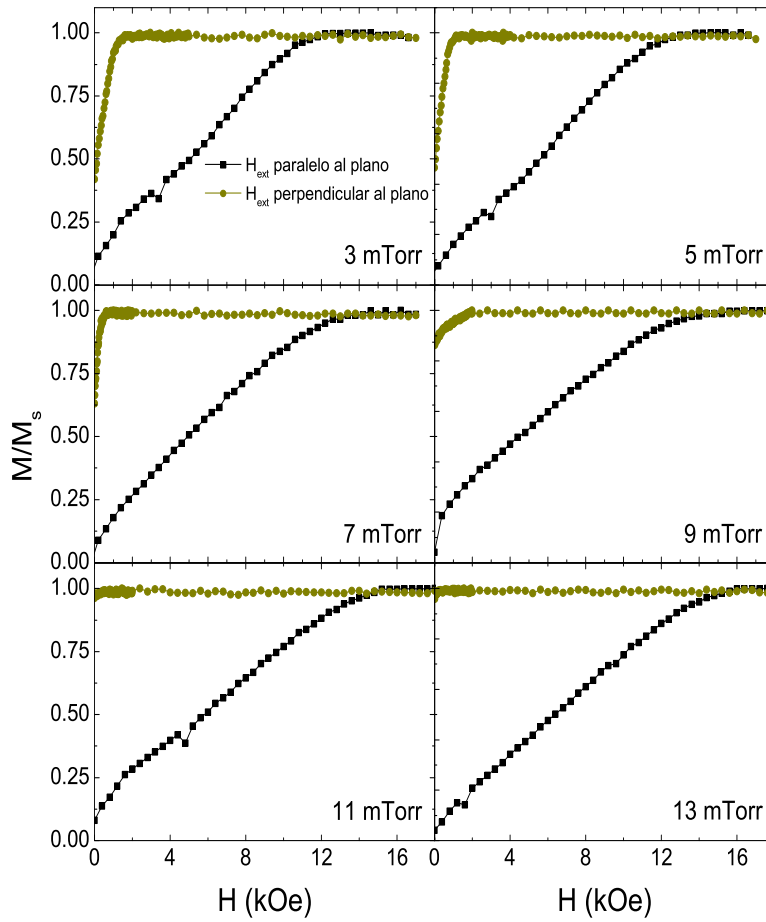


Figura 4.14: Curvas M vs. H normalizadas, medidas con el campo externo H aplicado paralelo y perpendicular al plano de la película. La constante de anisotropía efectiva puede estimarse del campo de saturación perpendicular $H_{s\perp}$ o de la diferencia entre las áreas bajo las curvas.

resonancia ferromagnética (FMR). En esta serie de muestras realizamos medidas en las frecuencias $f = 9.4$ GHz (Banda X), $f = 24$ GHz (Banda K), $f = 34$ GHz (Banda Q) y $f = 94.2$ GHz (Banda W). Las muestras pueden ser rotadas dentro del resonador, lo que nos permite realizar medidas con el campo externo aplicado en dirección normal y paralela al plano de la película. En la Fig. 4.15 se presentan espectros típicos para todas las bandas de la muestra de $P_{Ar} = 3$ mTorr en las configuraciones paralela y perpendicular. Al igual que en las mediciones de resonancia en la serie de muestras del capítulo 3, las líneas adicionales que se observan en la configuración perpendicular corresponden a modos no uniformes de ondas de spin estacionarias [96], cuyo análisis no se presentará en esta tesis.

Usando los valores de campo de resonancia para la configuración paralela y perpendicular $H_{r\parallel}$ y $H_{r\perp}$, y las ecuaciones de Smit y Beljers [88], se puede llegar a las siguientes relaciones válidas para el modo de precesión uniforme:

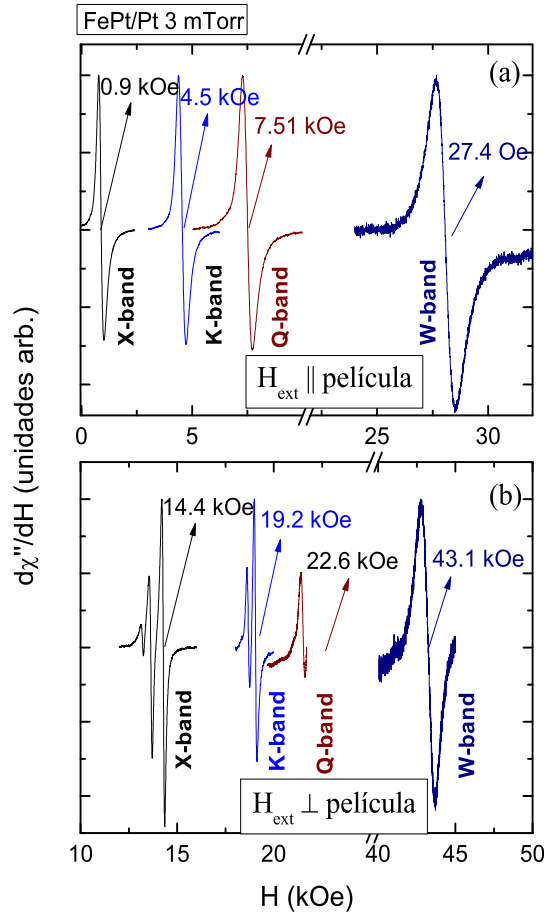


Figura 4.15: Espectros de resonancia ferromagnética típicos medidos en las cuatro bandas disponibles, en la configuración (a) paralela y (b) perpendicular al plano de la película. Las mediciones corresponden a la muestra crecida a $P_{\text{Ar}} = 3$ mTorr. En cada gráfico también se indica el campo de resonancia H_r del modo uniforme. Debido a la limitación en el máximo campo magnético disponible, para H_{\perp} en banda Q, H_r fue extrapolado de una variación angular cercana a la dirección normal al plano.

$$\begin{aligned} \frac{\omega}{\gamma} &= H_{r\perp} - H_{\text{eff}} \\ \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 &= (H_{r\parallel} + H_{\text{eff}}) H_{r\parallel}, \end{aligned} \quad (4.11)$$

donde $\omega = 2\pi f$, siendo f la frecuencia de excitación, $\gamma = g\mu_B/\hbar$, siendo g el factor $-g$, μ_B el magnetón de Bohr y \hbar la constante de Planck reducida. Para sistemas en los que compiten la anisotropía de forma con un término de anisotropía perpendicular definimos al campo de anisotropía efectivo como $H_{\text{eff}} = 4\pi M_s - 2K_{\perp}/M_s$, debiendo coincidir con el campo de saturación perpendicular $H_{s\perp}$ de las medidas magnéticas estáticas.

Las ecuaciones de Smit y Beljers son válidas si la muestra se encuentra completamente saturada. En banda X en la configuración paralela, el campo de resonancia puede ser menor que el de saturación. Además, el campo máximo

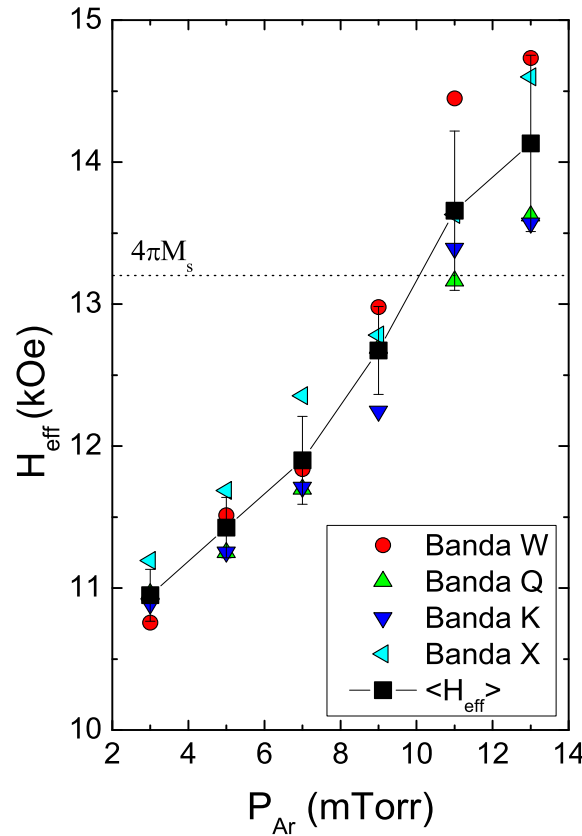


Figura 4.16: Dependencia del campo de anisotropía efectiva con P_{Ar} para las cuatro frecuencias disponibles. También se grafica el valor promedio de las medidas para cada muestra. La línea punteada corresponde a $4\pi M_s$, el campo de anisotropía de forma para una película delgada.

disponible es menor que $H_{r\perp}$ en banda Q, por lo que no fue posible medir de forma directa el modo uniforme en este caso. Por estas razones se usaron las medidas en bandas K y W para calcular el factor $-g$, obteniéndose un valor medio de $g = 2.07(2)$. Con este valor de g , usamos una (en el caso de banda X) o ambas ecuaciones 4.11 para estimar H_{eff} . La dependencia del campo efectivo con P_{Ar} se muestra en la Fig. 4.16 junto con el valor medio $\langle H_{eff} \rangle$ obtenido de las cuatro frecuencias. El aumento de H_{eff} con P_{Ar} es nuevamente consistente con la relajación de tensiones y la correspondiente disminución en la constante de anisotropía perpendicular. Se observa que para $P_{Ar} > 9$ mTorr el campo de anisotropía efectivo se hace mayor que $4\pi M_s$, indicando que la anisotropía pasa de estar perpendicular al plano a estar dentro del plano de la película. En la Fig. 4.13 se comparan los resultados de K_{\perp} obtenidos por FMR y mediciones de magnetización DC, encontrándose un excelente acuerdo entre ambos métodos. Notar que la evolución de K_{ME} con la presión de Ar sigue la misma tendencia que K_{\perp} lo que, como se discutió previamente, es un fuerte indicativo de la predominancia de la contribución magnetoelástica por sobre la anisotropía magnetocristalina.

A partir de los resultados volcados en la Fig. 4.13 logramos establecer una correspondencia entre la presión de Ar utilizada durante el proceso de fabricación y el factor de calidad Q de cada muestra. A partir de esto, podemos analizar la dependencia del semiperíodo de los *stripes* $\lambda_s/2$ con Q . En la Fig. 4.17 graficamos las medidas experimentales junto con la Ec. 1.15 [44], que predice un comportamiento asintótico para valores de Q bajos. Notar que a pesar de que la Ec. 1.15 no tiene parámetros libres, encontramos un muy buen acuerdo entre el modelo y los valores experimentales, tanto en la magnitud como en la dependencia de λ_s con Q . También podemos ver que el período aumenta a medida que Q disminuye, llegando a superar el espesor de la película en el caso de $P_{Ar} = 9$ mTorr. Hasta la actualidad, no hemos encontrado reportado un estudio experimental del período de los *stripes* en función del factor de calidad en la región $Q < 1$. Ha sido publicado un estudio en películas de FePt en el cual se observa que $\lambda_s/2$ aumenta con Q , debido a la transformación gradual entre las fases cristalógicas A1 y L1₀ en las muestras [1]. Sin embargo, en ese caso $2.5 \leq Q \leq 5$, un régimen completamente diferente al investigado en este capítulo.

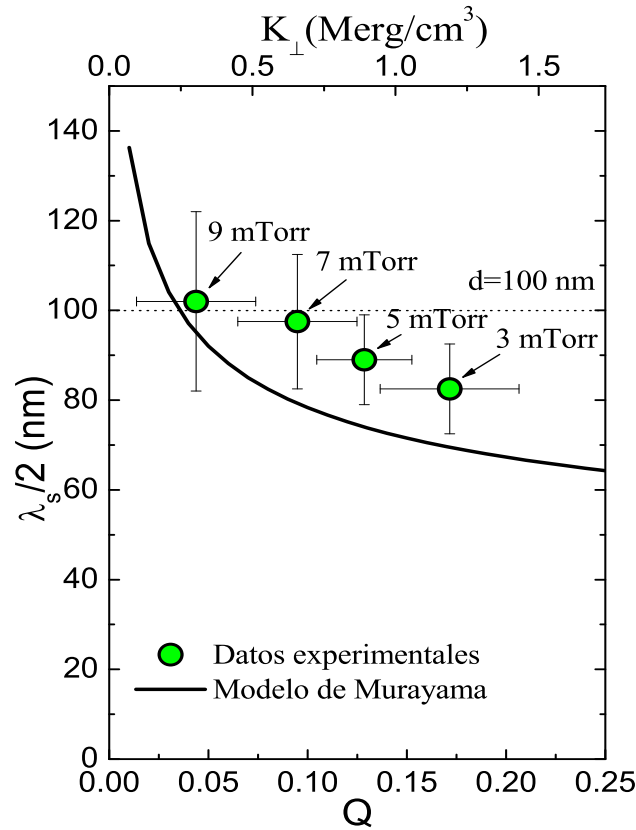


Figura 4.17: Semiperíodo de los *stripes* en función del factor Q y la anisotropía perpendicular (escala superior). Los círculos corresponden a los datos experimentales mientras que la línea continua representa el semiperíodo por el modelo de Murayama (Ec. 1.15). La línea punteada indica el espesor de las muestras.

Sukstanskii y Primak [45] desarrollaron un modelo simple unidimensional que consiste en fijar la dirección del vector magnetización en el sentido de los *stripes*, alternando en cada tira la componente perpendicular (estos modelos se explican con mayor detalle en la sección 1.3.2 de la Introducción). Este modelo predice un semiperíodo constante $\lambda_s/2 \sim d$ en el caso límite $d \gg l_e = \sqrt{A/(2\pi M_s^2)}$, donde l_e es la longitud de intercambio. En nuestro caso $l_e \sim 3$ nm, por lo que este comportamiento sería esperado. De todas formas, la estructura de los *stripes* es evidentemente más compleja que un patrón de franjas perfectamente paralelas (ver imágenes MFM en la Fig. 4.11). Los resultados experimentales parecen tener un mayor acuerdo con el ya discutido Modelo III de Murayama [44], en el cual se considera un grado de libertad más para el vector magnetización, permitiendo además una fluctuación senoidal en el plano $x - y$ dentro de cada tira. Esta adición resulta en una dependencia funcional entre $\lambda_s/2$ y Q .

4.5. Conclusiones

Usando diferentes técnicas experimentales pudimos mostrar que la configuración de dominios magnéticos en películas delgadas de FePt de espesor constante (en este caso, $d \sim 100$ nm) está determinada mayormente por las tensiones residuales. En esta serie de películas, las tensiones fueron modificadas variando la presión de argón durante el crecimiento de las muestras. Para esta serie de muestras hemos hallado que para $P_{Ar} = 9$ mTorr el espesor crítico es del orden del espesor de las películas $d_{cr} \sim d \sim 100$ nm. La variación del período de los dominios magnéticos con el factor de calidad Q puede ser descrita satisfactoriamente utilizando el modelo de Murayama, el cual no posee parámetros libres.

En este trabajo modificamos las tensiones residuales utilizando P_{Ar} , pero también sería posible hacerlo de forma externa a través de, por ejemplo, un sustrato piezoeléctrico que permitiría controlar el estado magnético utilizando una tensión eléctrica. El FePt-A1 es un potencial candidato para estos dispositivos ya que posee una magnetostricción considerable y tiene características de ferromagneto blando.

Capítulo 5

Diagrama de fases magnético para la formación de dominios en películas delgadas de FePt

5.1. Motivaciones y objetivos

En el capítulo anterior presentamos el estudio de una serie de películas delgadas con el mismo espesor nominal $d = 100$ nm y demostramos que es posible modificar de forma controlada K_{\perp} a través de las condiciones de fabricación (en particular, usamos la presión de argón en la cámara de *sputtering* [26, 49, 50]).

Con el objetivo de determinar la dependencia de d_{cr} con el factor de calidad y verificar nuevamente las predicciones de modelos teóricos, se fabricó una nueva serie de muestras en las cuales se variaron no solo las condiciones de fabricación, sino también el espesor. En el presente capítulo nos enfocaremos en la caracterización de la estructura magnética de esta nueva serie de películas. Combinamos técnicas de magnetización DC e imágenes de microscopía de fuerza magnética, lo que nos han permitido construir un diagrama de fases de dominios magnéticos en el que se identifican regiones con dominios planares o *stripes*, según el espesor de la muestra y el factor de calidad Q asociado a las tensiones residuales.

5.2. Fabricación y caracterización por difracción de rayos-X

En el capítulo anterior variamos P_{Ar} en el rango de 3 a 13 mTorr manteniendo constante el espesor nominal en 100 nm. Encontramos que la transición de dominios en *stripes* a planares ocurre entre 9 y 11 mTorr. Conociendo el valor crítico de P_{Ar} para

un espesor dado, y con el objetivo de estudiar esta transición, fabricamos tres series de muestras con P_{Ar} fijo, variando el espesor. Como ya hemos estudiado muestras crecidas con $P_{Ar} = 3$ mTorr en el capítulo 3, fabricamos tres nuevas series con $P_{Ar} = 5, 7$ y 9 mTorr (ver Tabla 5.1). El rango de espesores en cada una de las series fue elegido de manera tal de incluir d_{cr} , es decir, el espesor en el cual el cambio en la estructura de dominios es esperado. Al igual que en la serie anterior, para proteger las películas de oxidación, se creció una película delgada en la superficie de aproximadamente 3 nm de espesor de un material no magnético (en este caso rutenio). Utilizamos el mismo blanco, sustratos y las mismas técnicas de fabricación que ya describimos en el capítulo 4.

P_{Ar} (mTorr)	d (nm)	d (nm)	d (nm)	d (nm)	d (nm)
5	20	31	40	47	63
7	51	56	73	81	89
9	71	78	82	94	99

Tabla 5.1: Detalle de los espesores para las diferentes series de muestras que estudiamos en este capítulo.

Las películas fueron caracterizadas usando difracción de rayos-X. Para una mejor alineación de las muestras, los difractogramas fueron obtenidos luego de realizar un hamacado alrededor del pico de difracción (400) del sustrato de silicio. Como se puede ver en la Fig. 5.1, los únicos picos de difracción presentes en el rango $30^\circ < 2\theta < 70^\circ$ son los correspondientes a las reflexiones del FePt (111) y (200) y los debidos al sustrato de silicio. El pico de FePt (220), esperado en $2\theta \sim 69.7^\circ$, se superpone con la reflexión mucho más intensa de Si (400).

En primer lugar, se puede observar que las características principales de los difractogramas, como textura (relación entre las intensidades I_{111}/I_{200}), tamaño de grano (ancho de los picos de difracción) y tensiones residuales (relacionado con la posición 2θ de los picos de difracción a través de la ley de Bragg) no cambian de forma significativa respecto de las muestras ya estudiadas en los capítulos anteriores.

En el capítulo 4 se realizó una caracterización estructural exhaustiva y se discutió en detalle la evolución de la textura con la presión de argón. En esta nueva serie los espesores más delgados y el tamaño más pequeño de algunas muestras hacen que la intensidad de los picos, particularmente el (200), sea mucho menor. A pesar de que la medición de la altura de la reflexión (200) no es tan confiable, en general, las muestras presentan un comportamiento similar al desarrollado en el capítulo 4: se favorece el crecimiento de granos con la dirección cristalográfica [111] perpendicular al plano de la película, la textura no muestra una dependencia sistemática con el espesor pero, en el rango de estudio, aumenta con P_{Ar} de manera consistente con lo ya discutido en la

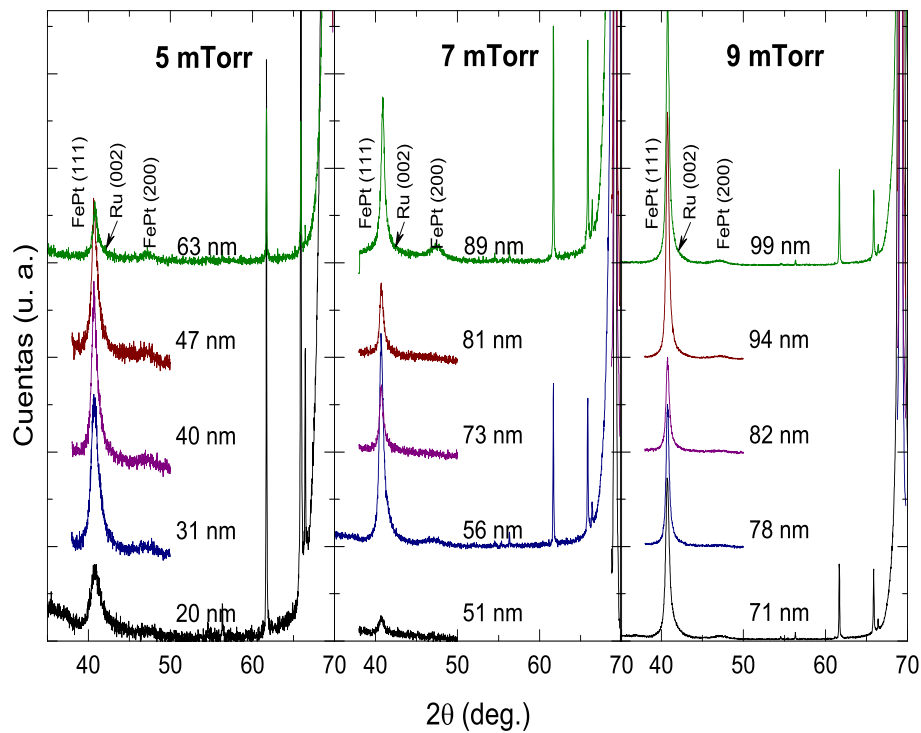


Figura 5.1: Difractogramas de las series de FePt con $P_{Ar} = 5, 7$ y 9 mTorr. Las reflexiones que se observan en el rango $35^\circ < 2\theta < 70^\circ$ pueden ser indexadas como los picos (111) y (200) pertenecientes a la fase cristalina A1 de FePt. Se encuentra indicado un pequeño pico correspondiente a la capa protectora Ru (002) en $2\theta \sim 42.4^\circ$.

sección 4.3.

Un parámetro de gran interés en el presente estudio es la deformación ε_z , íntimamente relacionada con el ángulo de difracción 2θ a través de la distancia interplanar d_{111} . En la Fig. 5.2 se muestra el valor de d_{111} obtenido a partir de la posición del pico (111) y la ley de Bragg, $n\lambda_{Cu} = 2d_{hkl} \sin \theta_{hkl}$. Es importante notar que, a pesar de la dispersión, el valor medio disminuye en cada serie a P_{Ar} constante, lo que nos indica que (si se cumple $d_{111} > d_{111-0}$) la deformación ε_z también disminuye a medida que aumentamos la presión de argón.

El valor de distancia interplanar para el caso relajado que mostramos en la Fig. 5.2 y que utilizamos como valor de referencia para el cálculo de la deformación ε_z es el que obtuvimos por medio del método $\sin^2 \psi$ en el capítulo 4. Este método fue aplicado en películas de FePt de espesor nominal de 100 nm y fabricadas con $P_{Ar} = 3, 5$ y 13 mTorr. Encontramos que fabricar muestras en presiones de argón relativamente elevadas puede afectar el valor de la distancia interplanar para el caso de una película relajada, hallando $d_{0-111} \sim 0.22058(10)$ nm para $P_{Ar} = 3$ y 5 mTorr, pero $d_{0-111} \sim 0.22359(10)$ nm cuando $P_{Ar} = 13$ mTorr. El incremento en el valor de d_{0-111} suele ser debido a una expansión hidrostática de la red por la incorporación de impurezas [123]. Si suponemos que estas impurezas son átomos de argón atrapados en la película, la cantidad de gas

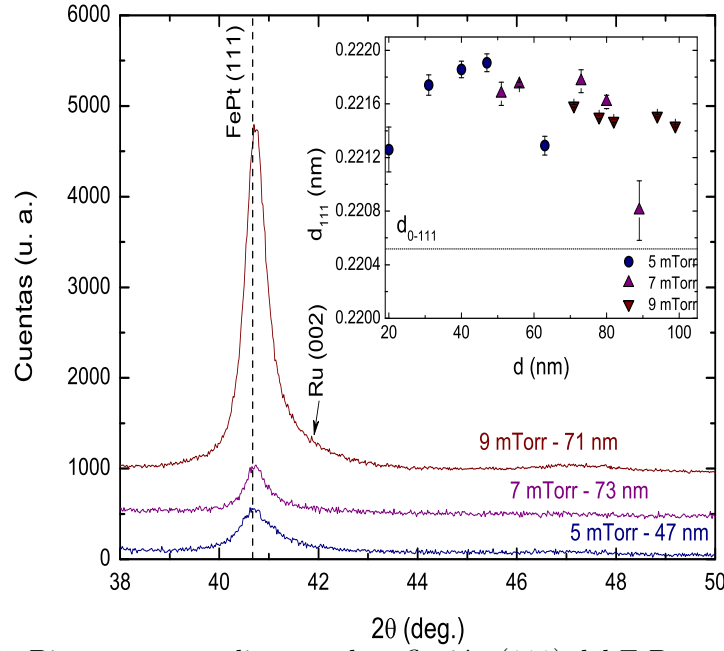


Figura 5.2: Picos correspondientes a la reflexión (111) del FePt para algunas muestras representativas de las series de $P_{Ar} = 5, 7$ y 9 mTorr. En particular, elegimos la película que presenta el máximo valor de distancia interplanar d_{111} para cada serie. La línea vertical sirve de guía para indicar la posición del pico de la muestra con $P_{Ar} = 5$ mTorr, notar que los corrimientos son muy pequeños, pero medibles. Recuadro: distancia interplanar como función del espesor calculadas a través de la posición de los picos (111) del FePt. La línea horizontal representa el valor relajado d_{0-111} estimado en el capítulo 4 usando el método $\sin^2\psi$.

incorporado no es lo suficientemente grande como para ser detectado por técnicas de espectroscopía como EDS, RBS o XPS, pero sí llega a tener un efecto relativamente pequeño en d_0 . En este capítulo consideramos que las presiones de argón utilizadas no son lo suficientemente grandes para cambiar la distancia interplanar relajada, por lo que utilizamos el valor hallado para las muestras de $P_{Ar} = 3$ y 5 mTorr.

5.3. Medidas magnéticas

El espesor crítico d_{cr} por encima del cual la configuración de dominios magnéticos cambia de planar a *stripes* depende fuertemente de la relación entre la componente de la anisotropía perpendicular y la energía desmagnetizante, $Q = \frac{K_{\perp}}{2\pi M_s^2}$. Ya hemos mencionado que, cuando $Q > 1$, la contribución de K_{\perp} es lo suficientemente fuerte como para alinear los momentos magnéticos en dirección normal al plano de la película, mientras que si $Q < 1$ la competencia entre ambas energías resulta en una magnetización esencialmente en el plano pero con una componente perpendicular, formando lo que hemos definido como dominios en *stripes*.

Las propiedades magnéticas de películas delgadas de FePt han sido estudiadas

previamente en función del espesor y bajo las mismas condiciones de fabricación (capítulo 3, [18, 19, 25, 96]) o de las tensiones residuales con espesor fijo (capítulo 4, [26]). A continuación presentamos un estudio de las propiedades magnéticas de muestras en las cuales se varían sistemáticamente no solo las condiciones de fabricación, sino también el espesor. Estos resultados son luego correlacionados con el espesor crítico de la transición entre dominios en el plano y en *stripes*. La posibilidad de controlar la deformación inicial de las muestras nos da la oportunidad de estudiar esta transición como función de las tensiones residuales en un rango definido de espesores. Finalmente, utilizando los resultados de las medidas magnéticas, logramos construir un diagrama de fases de dominios magnéticos que correlaciona el factor de calidad con el espesor crítico.

5.3.1. Magnetización DC y medidas de microscopía magnética

Usando un Magnetómetro de Muestra Vibrante (VSM) convencional, realizamos mediciones de curvas de histéresis a temperatura ambiente, con el campo externo en dirección paralela y perpendicular al plano de las películas. Para estudiar la topografía y configuración de dominios magnéticos en la superficie de las películas, se adquirieron imágenes con un microscopio de fuerza atómica/magnética (AFM/MFM). Al igual que las imágenes tomadas en capítulos anteriores, las mediciones fueron realizadas en estado remanente, luego de saturar las muestras con un campo externo de 5 kOe paralelo al plano de la película fuera del microscopio.

La magnetización de saturación promedio para esta serie de muestras fue obtenida de las mediciones de M vs. H presentadas en la Fig. 5.3, resultando un valor medio $M_s = 930(20)$ emu/cm³, un poco menor que el reportado para el material en volumen [119] $M_{s(bulk-FePt)} \sim 1100$ emu/cm³ y la serie de muestras del capítulo 4, con $\langle M_s \rangle \sim 1050$ emu/cm³. Esta discrepancia puede ser explicada debido a la diferencia relativamente pequeña en la estequiometría de las muestras de Fe/Pt: 45/55, que resulta más rica en Pt que la equiatómica 50/50 y por lo tanto tiene una magnetización de saturación menor. La diferencia entre series de películas es muy probablemente debido a efectos de oxidación por un vacío de base diferente en la cámara de *sputtering* o que la capa protectora de Ru de 3 nm no cubrió completamente toda la superficie de la película.

Como puede verse en la Fig. 5.3, las mediciones de magnetización de cada serie muestran una evolución en el comportamiento magnético a medida que el espesor aumenta. Las muestras más delgadas de cada serie de P_{Ar} presentan curvas de histéresis con valores para el campo coercitivo del orden $H_{coer} \sim 20 - 50$ Oe, relativamente pequeños, y una remanencia más alta, en completo acuerdo con el comportamiento habitual en películas con dominios magnéticos en el plano.

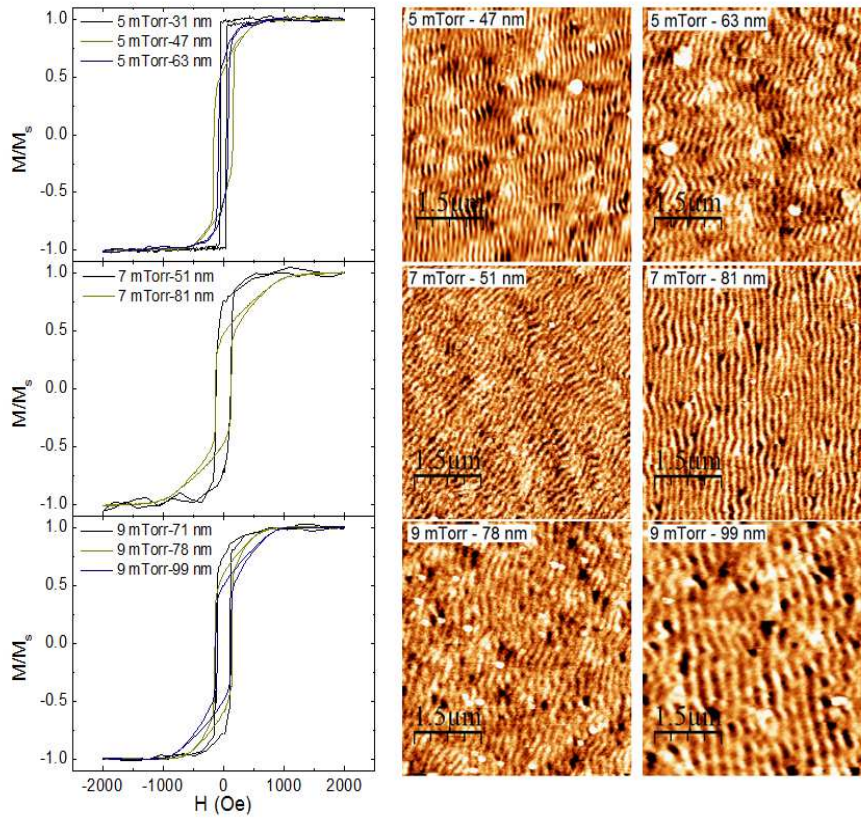


Figura 5.3: Izquierda: Curvas de histéresis con H paralelo al plano de la película para algunas muestras representativas de las series crecidas con $P_{\text{Ar}} = 5, 7$ y 9 mTorr. Derecha: imágenes MFM correspondientes a las medidas de M vs. H presentadas a la izquierda de la gráfica. No se incluyen las imágenes de las muestras de FePt $P_{\text{Ar}} = 5$ mTorr, $d = 31$ nm y $P_{\text{Ar}} = 9$ mTorr, $d = 71$ nm dado que presentan magnetización planar. Todas las imágenes tienen un tamaño de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$

Comparativamente, si observamos las muestras más gruesas, vemos surgir características típicas de dominios magnéticos en tiras: mayores campos coercitivos, $H_{\text{coer}} \sim 120 - 150$ Oe, remanencias más pequeñas debido a la componente perpendicular de la magnetización en los *stripes* y un crecimiento casi lineal de M con el campo entre $H = 0$ y la saturación. Como ya se ha discutido, esto último está relacionado con la alineación de la componente fuera del plano de la magnetización en la dirección del campo externo.

El comportamiento general que hemos descrito a través del análisis de las curvas M vs. H es completamente consistente con la estructura magnética que se presenta en las imágenes de MFM en la Fig. 5.3. En resumen, las muestras más delgadas muestran dominios planares y, a medida que aumenta el espesor, cambian a dominios en tiras. Debemos hacer una excepción en la serie a $P_{\text{Ar}} = 7$ mTorr en la cual los dominios en *stripes* ya se encuentran presentes en la muestra más delgada que fabricamos, $d = 51$ nm, aunque con un contraste relativamente débil.

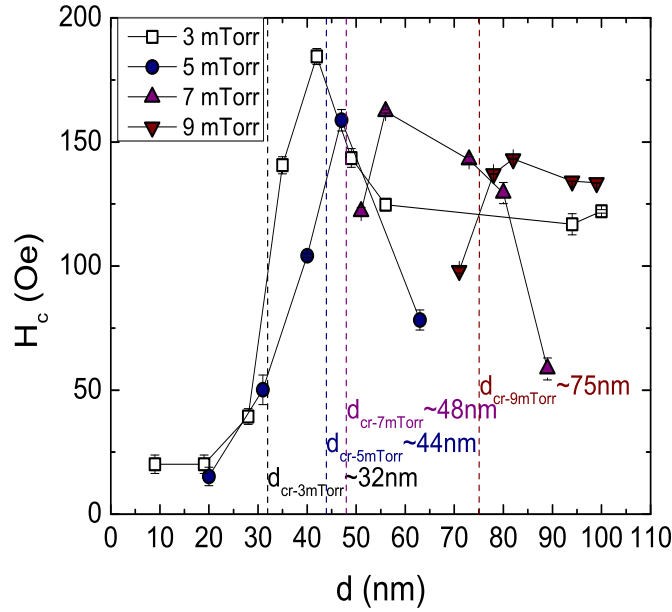


Figura 5.4: Campo coercitivo H_{coer} en función del espesor para cada serie de muestras con $P_{\text{Ar}} = 5, 7$ y 9 mTorr. Las líneas verticales indican el valor estimado de d_{cr} para cada serie. La evolución de H_{coer} es una indicación de la transición en la configuración de dominios magnéticos. La serie de $P_{\text{Ar}} = 3$ mTorr corresponde a datos presentados en el capítulo 3.

Como puede verse en la Fig. 5.4, el campo coercitivo aumenta lentamente para las muestras más delgadas para luego crecer algo más rápido cuando se produce el cambio en la configuración magnética de planar a *stripes*, principalmente debido al aumento en la densidad de paredes de dominio. El espesor crítico d_{cr} fue estimado usando las medidas en MFM que se muestran en la Fig. 5.3.

5.3.2. Determinación de la anisotropía perpendicular

Como ya mencionamos en el capítulo 4, la constante de anisotropía efectiva puede ser estimada utilizando diferentes métodos, en esta sección utilizaremos el método de las áreas. Este método establece que la diferencia entre las áreas bajo las curvas M vs. H medidas con H paralelo y perpendicular al plano del film es $A_{\parallel} - A_{\perp} = K_{\text{eff}}$. En la Fig. 5.5 se muestran las curvas de magnetización normalizadas que utilizamos en el cálculo de K_{eff} de algunas películas representativas.

Habiendo calculado la constante de anisotropía efectiva y conociendo el valor de M_s , estimamos el valor de K_{\perp} para cada una de las películas. El siguiente paso es utilizar las mediciones de difracción para conocer la contribución magnetoelástica a la anisotropía perpendicular. Como se menciona en la sección 4.4.2, la constante de anisotropía magnetoelástica está dada por la ecuación 4.10:

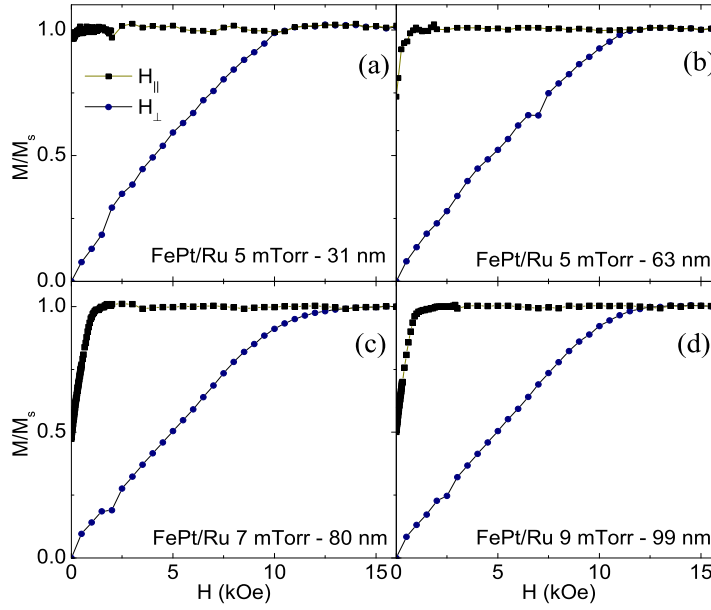


Figura 5.5: Primer cuadrante de las curvas M vs. H , con el campo externo paralelo y perpendicular al plano de la película, para las muestras (a) $P_{Ar} = 5$ mTorr - 31 nm (b) $P_{Ar} = 5$ mTorr - 63 nm, (c) $P_{Ar} = 7$ mTorr - 80 nm y (d) $P_{Ar} = 9$ mTorr - 99 nm. Según se discute en el texto, la anisotropía efectiva $K_{eff} = K_{\perp} - 2\pi M_s^2$ puede estimarse de la diferencia de áreas bajo las curvas.

$$K_{ME} = \frac{3}{2}\lambda\sigma_x = \frac{3}{2}\lambda E \frac{\varepsilon_z}{2\nu},$$

la cual depende de las tensiones en el plano σ_x y de la constante de magnetostricción que tomamos como $\lambda \sim 100 \times 10^{-6}$ (la elección de este valor ya fue discutida en el capítulo 4). La deformación $\varepsilon_z = \frac{d_{111} - d_{0-111}}{d_{0-111}}$ para cada una de las muestras fue estimada usando la distancia interplanar calculada (ver Fig. 5.2) a partir de los difractogramas de rayos-X y usando como distancia interplanar en el caso relajado lo obtenido en el capítulo anterior a través del método $\sin^2 \psi$, $d_{0-111} = 0.22058$ nm.

En la Fig. 5.6 comparamos la anisotropía perpendicular y la contribución magnetoelástica como función del espesor para cada P_{Ar} , observándose que tanto K_{\perp} como K_{ME} disminuyen a medida que aumenta la presión de Ar. En el siguiente análisis no se considera la película de $d = 20$ nm de la serie de $P_{Ar} = 5$ mTorr. Al ser tan delgada y al contar con una muestra pequeña, la débil señal de la medida de la curva de magnetización da como resultado un error muy grande en el cálculo de la anisotropía perpendicular.

A excepción de las muestras más gruesas para $P_{Ar} = 5$ y 7 mTorr, la anisotropía magnetoelástica parece ser aproximadamente independiente del espesor. En estas muestras en particular, puede verse una caída en el valor de K_{ME} y también, aunque

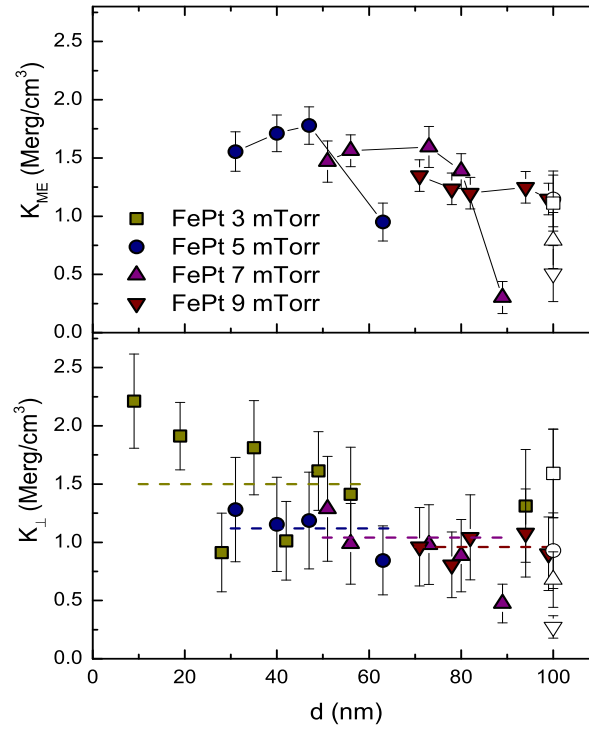


Figura 5.6: Anisotropía magnetoelástica K_{ME} y perpendicular K_{\perp} en función del espesor d . Los valores de K_{\perp} obtenidos para cada P_{Ar} son, dentro del error, aproximadamente constantes, por lo que hemos supuesto que K_{\perp} es independiente del espesor. El valor medio para cada P_{Ar} es representado en la figura como una línea horizontal. La serie de $P_{Ar} = 3$ mTorr corresponde a datos presentados en el capítulo 3. Los símbolos vacíos corresponden a los datos de la serie de muestras del capítulo 4, con $d \sim 100$ nm.

en menor medida, en el valor de K_{\perp} . Una posible explicación para este fenómeno puede ser el aumento en la temperatura durante el proceso de depósito cuando no hay un buen anclaje térmico entre el silicio y el portasustrato, que causa un relajamiento en las tensiones residuales. Medidas previas muestran que existe un incremento de al menos 30°C para tiempos de depósito relativamente largos. Este efecto es menos importante en una película más delgada ya que no se encuentra sometida al bombardeo el tiempo suficiente para que la temperatura aumente de forma notable. En la Fig. 5.6 se agregaron las anisotropías para las películas de la serie con espesor constante $d \sim 100$ nm del capítulo 4, que en general dan valores algo más bajos, tanto de la anisotropía perpendicular como magnetoelástica. Esta diferencia sistemática puede ser debida a la incerteza en la estimación de la magnetización de saturación, que a su vez afecta el cálculo de $K_{\text{eff}} \propto M_s^2$. Queremos destacar también la diferencia entre las curvas de magnetización con H paralelo al plano de las muestras fabricadas a $P_{Ar} = 9$ mTorr y con espesores $d \sim 99 - 100$ nm de esta serie y del capítulo 4, respectivamente. En la película de FePt 100 nm presentada en el capítulo 4, el lazo de

histéresis tiene una forma más bien cuadrada y un campo coercitivo del orden ~ 20 Oe (Fig. 4.11), mientras que en la película FePt 9 mTorr $d = 99$ nm de esta serie se midió un lazo característico de una película con *stripes* (Fig. 5.3), siendo que en ambas muestras pueden observarse *stripes* en las imágenes de MFM. En este caso particular, las diferencias en las curvas de magnetización no son completamente inesperadas ya que las condiciones $P_{Ar} = 9$ mTorr, $d \sim 100$ nm se encuentran cercanas al espesor crítico y relativamente pequeñas diferencias en la determinación del espesor o la presión de argón en la cámara entre la fabricación de una serie y otra puede dar lugar a diferencias en su comportamiento magnético.

Es importante resaltar que una caída en K_{ME} es acompañada por un comportamiento similar en K_{\perp} , mostrando de forma evidente la fuerte influencia de las tensiones residuales en la anisotropía perpendicular. Notar que ambas cantidades son estimadas de forma completamente independiente: por un lado K_{ME} es obtenida de mediciones de difracción de rayos-X considerando solo factores estructurales, mientras que para calcular K_{\perp} utilizamos únicamente medidas magnéticas.

En la tabla 5.2 resumimos los resultados para la constante de anisotropía perpendicular K_{\perp} que hemos calculado a lo largo de los capítulos en función de la presión de argón. En principio, juntar estos resultados nos muestra que las distintas series de películas fabricadas a igual P_{Ar} tienen la misma K_{\perp} dentro de la incerteza con la cual se pudo determinar su valor.

P_{Ar} (mTorr)	3	5	7	9
$\langle K_{\perp-Cap3} \rangle$ (Merg/cm ³)	1.5 ± 0.4	-	-	-
$\langle K_{\perp-Cap4} \rangle$ (Merg/cm ³)	1.6 ± 0.4	0.9 ± 0.3	1.0 ± 0.5	0.3 ± 0.9
$\langle K_{\perp-Cap5} \rangle$ (Merg/cm ³)	-	1.1 ± 0.5	0.7 ± 0.2	0.9 ± 0.8

Tabla 5.2: Constantes de anisotropía perpendicular promedio en función de la presión de argón. A modo de comparación, agregamos los datos de las series de películas de los capítulos 3 [18] y 4 en función de P_{Ar} .

Dado que K_{ME} es una contribución a la anisotropía perpendicular, se espera que se cumpla $K_{ME} < K_{\perp}$. Si observamos con atención los valores de las constantes de anisotropía perpendicular y magnetoelástica que presentamos en la Fig. 5.6 podemos notar que, en general, esto no se cumple. Muy probablemente, esto se debe a la pobre estimación de la constante de magnetostricción $\langle \lambda \rangle$. En primer lugar, no existen datos confiables reportados de esta constante para películas de FePt en la fase cristalina desordenada por lo que la deducción de $\langle \lambda \rangle$ proviene de una diversidad de datos en un rango amplio de valores para sistemas similares al nuestro. Además, recordemos que λ suele ser fuertemente dependiente de la dirección cristalográfica. Si la orientación de los granos es completamente aleatoria, la magnetostricción del policristal en la dirección paralela a la magnetización puede ser caracterizada por una sola constante que puede

interpretarse como una suerte de promedio de todas las direcciones cristalográficas. En nuestra estimación previa supusimos que trabajamos con una muestra policristalina con granos orientados completamente al azar, despreciando el efecto de la textura de la dirección (111) perpendicular al plano que muestran todas las películas que hemos estudiado.

Para comprobar el impacto del coeficiente de magnetostricción en el valor final de K_{ME} , calculamos a partir de los datos en la Fig. 5.6 cuál debiera ser el valor de λ para que se cumpla que $K_{\text{ME}} \sim K_{\perp}$ y obtuvimos un valor medio de $\lambda = (70 \pm 20) \times 10^{-6}$, similar al reportado por Aboaf et al. [66] y el que hemos utilizado para la serie de muestras del capítulo 1. El error relativamente grande en este valor proviene de la incerteza en la determinación de las constantes de anisotropía que usamos para esta estimación. De todas formas, la similitud en la dependencia de K_{ME} y K_{\perp} con el espesor y la obtención de una constante de magnetostricción cercana a los valores reportados cuando se hace la comparación de ambas medidas, nos indica nuevamente que los efectos de tensiones residuales dominan sobre los de textura.

5.3.3. Determinación del espesor crítico en función del factor de calidad

En la Fig. 5.7 mostramos la dependencia de $\lambda/2$ como función del espesor. El semiperíodo fue obtenido de las imágenes MFM usando la opción transformada rápida de Fourier (2D-FFT) incorporada en el software WSxM [120].

Los dominios magnéticos en *stripes* en películas delgadas han sido estudiados por diversos autores [31, 44, 45]. En los capítulos anteriores hemos encontrado que el modelo de Murayama [44] en particular, describe con buenos resultados la evolución de los *stripes* al variar parámetros como el espesor (desarrollado en la Sección 3.1.2, [18]), o el factor Q (capítulo 4). Como ya explicamos en la sección 1.3.2, Murayama propuso un comportamiento asintótico para la dependencia del semiperíodo de los *stripes*, válido para $Q \rightarrow 0$, como función de la constante de intercambio A , el espesor de la película d , la magnetización de saturación M_s y el factor de calidad Q (Ec. 1.15):

$$\frac{\lambda_s}{2} = \left[\frac{A\pi^2}{K_{\perp}} (Q + 1) \right]^{1/4} \sqrt{d}.$$

Recordemos que en este modelo, no solo se toma en consideración la variación de la dirección de los momentos magnéticos en la dirección z (perpendicular al plano de la película), sino que también se incluye un movimiento periódico de la proyección de la magnetización en el plano $x - y$.

En la Fig. 5.7 se incluyen, además de los datos experimentales de las distintas series de muestras, la dependencia funcional de la Ec. 1.15. Notar que no hay parámetros

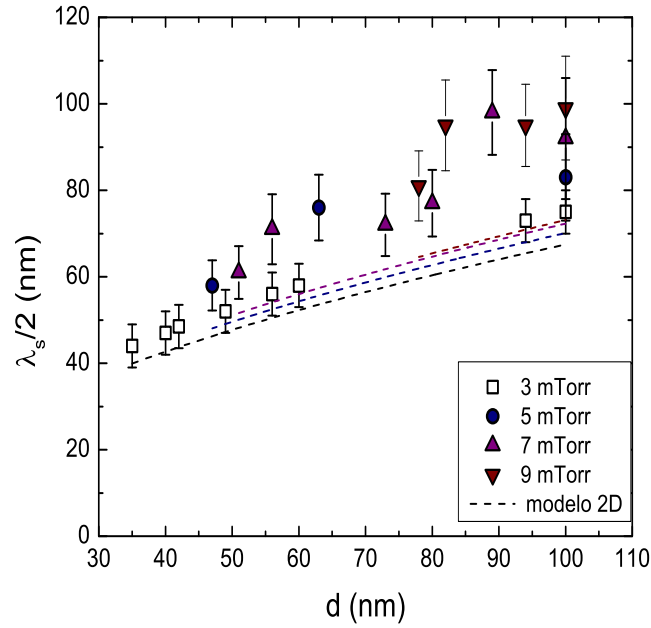


Figura 5.7: Semiperíodo como función del espesor de las muestras fabricadas con $P_{Ar} = 3, 5, 7$ y 9 mTorr. Las líneas muestran la predicción del modelo de Murayama (Ec. 1.15) de la evolución del período de los *stripes* con el espesor, considerando la misma constante de intercambio $A \sim 0.6 \times 10^{-6}$ erg/cm, magnetización de saturación $M_s = 866$ emu/cm³ para $P_{Ar} = 3$ mTorr y $M_s = 930$ emu/cm³ para el resto de las muestras y el factor de calidad que calculamos previamente por medio de las medidas magnéticas, para cada P_{Ar} . La serie de $P_{Ar} = 3$ mTorr corresponde a datos presentados en el Capítulo 3.

libres en esta ecuación, para cada serie utilizamos el mismo K_{\perp} representado por la línea horizontal en la Fig. 5.6, $M_s = 866$ emu/cm³ para $P_{Ar} = 3$ mTorr y $M_s = 930$ emu/cm³ para $P_{Ar} = 5, 7$ y 9 mTorr. La constante de intercambio ha sido reportada para el FePt de forma aproximadamente independiente del grado de orden químico, con un valor medio de $A \sim 0.6 \times 10^{-6}$ erg/cm [1].

Si se deja libre el parámetro Q de la Ec. 1.15 en esta serie de muestras, el modelo de Murayama predice valores más pequeños de Q , del orden de $Q \sim 0.07$, que los que se calculan a través de los valores experimentales de K_{\perp} (Fig. 5.8). Debido al error en la estimación del período de los *stripes* y el hecho de no tener una medida directa de la constante de intercambio para nuestras muestras, encontramos más confiables los valores de Q obtenidos por medio de medidas magnéticas. Resultados similares, con predicciones de Q menores a las observadas, han sido publicados previamente por nuestro grupo [18] para la serie de muestras fabricadas con $P_{Ar} = 3$ mTorr que hemos estudiado en el Capítulo 3. A pesar de que en esa serie los datos experimentales están muy bien representados por la misma dependencia \sqrt{d} , el prefactor de la Ec. 1.15 (llamado α_0 en ese trabajo) es mayor que el resultante de usar los valores estimados para Q , M_s y A . En ese mismo trabajo también se ajustaron los datos utilizando una

expresión analítica desarrollada por los autores Kooy y Enz [124] para explicar la estructura de *stripes* en películas con $Q \geq 1$, aunque ha sido también utilizada para ajustar datos en muestras de Co con $Q \sim 0.4$ [20]. Con ese modelo se consigue un resultado mucho más cercano al valor experimental. Aún así, el comportamiento general es muy bien descrito por la dependencia del semiperíodo con la raíz cuadrada del espesor del modelo de Murayama y es razonablemente consistente con los parámetros que hemos utilizado.

Del modelo de Murayama también puede obtenerse la curva que describe la transición entre una estructura de dominios magnéticos en el plano y en *stripes* en función del espesor del film y del factor de calidad Q . Como se detalla en la sección 1.3.2 de la Introducción, Sukstanskii y Primak [45] desarrollaron una expresión paramétrica analítica usando un modelo simplificado (Ec. 1.16). En la Fig. 1.8 se compara la predicción de ambos modelos para el espesor crítico en función del factor de calidad por el modelo de Sukstanskii [45] y de Murayama [44], para valores de magnetización de saturación y longitud de intercambio correspondientes a la serie de muestras del capítulo 3, encontrando que ambas coinciden de forma aproximada para valores de $Q \lesssim 0.4$.

El análisis de las mediciones magnéticas y de microscopía nos permitieron correlacionar d_{cr} en función de K_{\perp} , y por consiguiente de Q , para cada serie de muestras a P_{Ar} constante. En la Fig. 5.8 graficamos los espesores de las diferentes películas estudiadas a lo largo de los capítulos en función del factor Q , distinguiendo entre las muestras en las cuales encontramos experimentalmente una estructura de dominios planar (símbolos abiertos) o en *stripes* (símbolos llenos). Aunque, dentro del error experimental, encontramos valores de Q algo diferentes para cada muestra en particular, supondremos un factor de calidad constante para cada serie con $P_{\text{Ar}} = 3, 5, 7$ y 9 mTorr. Este valor de Q fue calculado a través de las medidas de anisotropía perpendicular, resumidas en la tabla 5.2. También graficamos las curvas d_{cr} vs Q propuestas por los modelos de Murayama y Sukstanskii (Ec. 1.16). En el diagrama de fases de la Fig. 5.8 puede verse que tanto las predicciones teóricas como los resultados experimentales muestran que el espesor crítico disminuye a medida que el factor de calidad aumenta.

De la curva d_{cr} como función de Q que se obtiene a partir de la Ec. 1.16, pueden calcularse los siguientes espesores críticos $d_{\text{cr-1D}}$ para las diferentes series de películas: $d_{\text{cr-1D}}(3 \text{ mTorr}) \sim 25 \text{ nm}$ (para obtener este dato fue necesario graficar una nueva curva para d_{cr} con el valor de M_s correspondiente a esta serie), $d_{\text{cr-1D}}(5 \text{ mTorr}) \sim 41 \text{ nm}$, $d_{\text{cr-1D}}(7 \text{ mTorr}) \sim 52 \text{ nm}$ y $d_{\text{cr-1D}}(9 \text{ mTorr}) \sim 58 \text{ nm}$, en su mayoría valores cercanos a los espesores para los cuales desaparecen los *stripes*, estimados a partir de las imágenes de MFM: $d_{\text{cr-3mTorr}} = (32 \pm 3)$, $d_{\text{cr-5mTorr}} = (44 \pm 3) \text{ nm}$ y $d_{\text{cr-7mTorr}} = (48 \pm 3) \text{ nm}$. Para obtener un valor experimental para el espesor crítico de la serie $P_{\text{Ar}} = 7 \text{ mTorr}$,

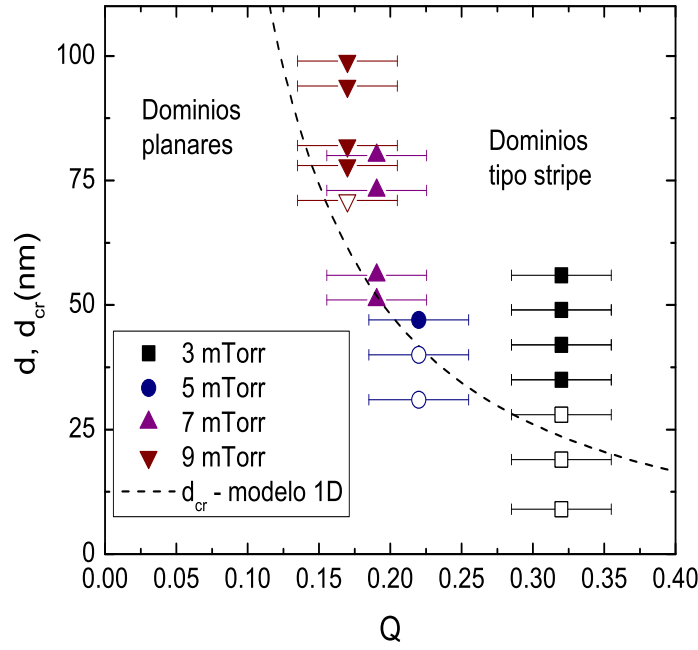


Figura 5.8: Espesores de las series de muestras fabricadas con $P_{Ar} = 3, 5, 7$ y 9 mTorr en función del factor de calidad Q y modelo de Sukstanskii para d_{cr} . Hemos asumido un valor constante de Q para los distintos espesores de una misma serie. Los símbolos abiertos indican muestras con magnetización en el plano, mientras que los símbolos llenos representan muestras con *stripes*. La serie de $P_{Ar} = 3$ mTorr corresponde a datos presentados en el capítulo 3.

consideramos que $d_{cr-5mTorr} \leq d_{cr-7mTorr} \leq 51$ nm, donde la cota superior está dada por el menor espesor de la serie, en el cual ya pueden observarse *stripes* (Fig. 5.3). En la serie $P_{Ar} = 9$ mTorr el espesor crítico se espera que esté cerca de 58 nm pero no encontramos *stripes* en la muestra de 71 nm por lo cual es posible que hayamos sobreestimado el valor de Q . Por ejemplo, si hubiéramos considerado en el cálculo de \bar{Q} a la muestra de $d = 100$ nm y $P_{Ar} = 9$ mTorr del capítulo 4 el factor de calidad quedaría $Q \sim 0.15$ en lugar de $Q \sim 0.18$ y el espesor crítico estimado $d_{cr} \sim 74$ nm coincidiría con el medido, dentro del margen de error.

Para explicar las diferencias entre el modelo propuesto y los datos experimentales, debemos tener en consideración que existe una incerteza relativamente grande en el factor de calidad, aunque aún así los valores se encuentran dentro del error en el diagrama de fases de la Fig. 5.8. Además, la curva d_{cr-1D} calculada a partir de la Ec. 1.16 cambia cada vez más rápidamente a medida que Q decrece, por lo que se espera una mayor incerteza para Q pequeños. Considerando el error experimental, y que hemos asumido valores de Q independientes del espesor en cada serie de películas, encontramos un muy buen acuerdo entre los datos experimentales y el espesor crítico que predice el modelo unidimensional en todas las series de muestras.

5.4. Conclusiones

En este capítulo comprobamos que la causa de la desaparición de los *stripes* es el aumento en el valor del espesor crítico a través de la modificación del factor de calidad de las muestras. En cuanto a las características estructurales, los difractogramas parecen indicar que, al menos en el rango $d = 50 - 100$ nm no hay cambios notables con el espesor en la textura y en las tensiones residuales, para una P_{Ar} fija. Posiblemente debido a efectos de calentamiento durante el proceso de fabricación, las muestras más gruesas de las series de $P_{Ar} = 5$ y 7 mTorr mostraron una caída en la contribución magnetoelástica a la anisotropía. Más allá de las razones detrás del fenómeno, es muy interesante notar que éste es acompañado por una disminución en el valor de K_{\perp} , lo que una vez más es una clara indicación de la fuerte contribución de las tensiones residuales a la anisotropía perpendicular, que domina sobre la componente magnetocristalina. A través de las medidas magnéticas y las imágenes MFM también fue posible correlacionar el factor de calidad con el espesor crítico en cada serie.

Capítulo 6

Acople magnético de dominios tipo *stripes* en bicapas Fe₂₀Ni₈₀/FePt

6.1. Motivación y objetivos

En este capítulo profundizamos en las propiedades de los dominios magnéticos tipo *stripes*. Utilizando las mismas técnicas empleadas anteriormente fabricamos una serie de bicapas de FePt y Fe₂₀Ni₈₀ (aleación conocida como Permalloy que de aquí en adelante llamaremos Py). El objetivo es combinar dos materiales que presentan un comportamiento magnético similar: una componente de la anisotropía perpendicular al plano que da origen a un cierto espesor crítico d_{cr} por encima del cual la configuración de dominios cambia de planar a *stripes*. Sin embargo, algunas de las características magnéticas de las películas delgadas de Py son sustancialmente diferentes de las que hemos estudiado previamente para FePt, por ejemplo, un campo coercitivo y de saturación comparativamente más pequeños. En cuanto a la estructura de dominios, el período de los *stripes* es apreciablemente mayor en Py y en general muestra una estructura de tiras paralelas y bien alineadas con un espesor crítico mucho mayor al de FePt. Al combinar estos materiales y observar la evolución de la configuración magnética, pretendemos estudiar la manera en que el acople entre capas afecta la estructura de dominios y si la interacción magnética modifica el espesor crítico en el que aparecen los *stripes*.

6.2. Fabricación de las bicapas y caracterización por difracción de rayos-X

El Permalloy es una aleación de composición atómica nominal Fe 20 % y Ni 80 %. Descubierta en los laboratorios Bell en 1914, llama la atención por sus interesantes propiedades, particularmente su alta permeabilidad magnética y su magnetostricción

casi nula [125]. Este compuesto no ha dejado de ser estudiado desde entonces [126–128], caracterizado además por ser un material magnéticamente blando con bajos campos de saturación ($H_s \sim 5$ Oe) y coercitivo ($H_{\text{coer}} \sim 1$ Oe). En el caso de películas delgadas, encontramos un comportamiento similar a las películas de FePt: la magnetización se encuentra esencialmente en el plano debido a la anisotropía de forma, pero bajo ciertas condiciones, también puede presentarse una componente de anisotropía perpendicular. Cuando este es el caso, el cambio en la configuración de dominios magnéticos altera algunas de sus propiedades, resultando en un aumento del campo coercitivo y de saturación, en concordancia con una estructura de dominios en forma de *stripes*.

Las bicapas estudiadas en este capítulo fueron fabricadas a temperatura ambiente empleando técnicas de *sputtering* DC sobre sustratos de Si monocristalino (100) con una capa superficial de óxido nativo amorfo. Utilizamos el blanco de FePt que hemos descrito anteriormente y un blanco de Py de composición nominal Fe/Ni: 20/80. La cámara fue llevada a un vacío de base de $\sim 1.6 \times 10^{-6}$ Torr y las muestras fueron fabricadas con una potencia de 20 W y a una presión de argón constante, $P_{\text{Ar}} = 3$ mTorr. Como paso previo, se realizó una calibración de la velocidad de crecimiento para los parámetros de fabricación mencionados, dando como resultado $v_{\text{Py}} = 0.128(4)$ nm/s y $v_{\text{FePt}} = 0.204(4)$ nm/s. Para prevenir posibles efectos debido a la oxidación, todas las bicapas fueron recubiertas con una capa delgada de ~ 2 nm de SiO_2 , para la cual se utilizó el cañón de *sputtering* RF con una potencia de 50 W y $P_{\text{Ar}} = 10$ mTorr. La calibración en este caso arrojó un valor para la velocidad de depósito de $v_{\text{SiO}_2} = 0.016(2)$ nm/s.

Serie control	Serie A		Serie B	
Py	Py	FePt	FePt	Py
d (nm)				
313	108	107	102	11
114	300	10	107	107
24	300	20	111	222
	300	30	98	297
	300	40		
	300	50		
	300	60		

Tabla 6.1: Detalle de los espesores para las diferentes series de muestras que estudiamos en este capítulo. Los espesores de las muestras Py 300/FePt no pudieron ser medidas, por lo que incluimos el valor nominal. La incerteza en la medición del espesor es de ± 5 nm.

Se crecieron dos series de muestras: una con el Py en contacto con el sustrato y el FePt sobre el Py (serie A) y la serie B con el FePt en contacto con el sustrato y la

capa de Py sobre el FePt (ver esquema en la Fig. 6.1), además de una serie de control solo de Py con espesores $d = 24, 114$ y 313 nm. En la tabla 6.1 se presentan los espesores de cada una de las muestras que estudiaremos en este capítulo, medidos utilizando un perfilómetro de aguja convencional. En la serie A, con $d_{Py} = 300$ nm, encontramos que en algunos casos la película no tiene buena adherencia con el sustrato, desprendiéndose levemente e incluso despegándose por completo en algunos sectores. Esto nos impidió realizar medidas confiables de los espesores, por lo que simplemente utilizamos los valores nominales.

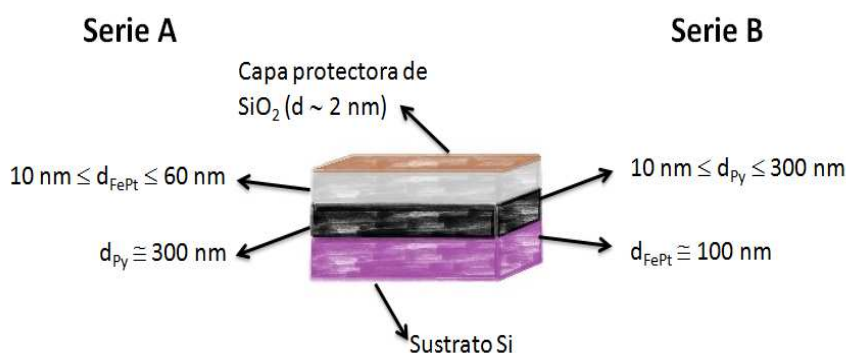


Figura 6.1: Esquema de la estructura de las bicapas estudiadas en este capítulo.

A temperatura ambiente y bajo las condiciones de crecimiento y composición descritas anteriormente se espera que, en aleaciones Fe-Ni, la fase cristalina fcc y químicamente desordenada, conocida como fase- γ , sea termodinámicamente estable hasta el punto de fusión [129]. Para analizar las características estructurales, realizamos difractogramas de rayos X (Fig. 6.2) para cuatro de las bicapas que estudiamos en este capítulo, dos con la capa superior de FePt: Py 108/FePt 107 nm y Py 300/FePt 60 nm (serie A) y dos con la capa superior de Py: FePt 107/Py 107 nm y FePt 98/Py 297 nm (serie B). Las reflexiones más intensas tanto para FePt como para Py son en la dirección (111), indicando una textura en esta dirección. También son visibles en algunos casos los picos correspondientes a las reflexiones (200) y (220) e inclusive la (311) del FePt, aunque la poca intensidad hace que no pueda estimarse la posición de los picos sin un gran margen de error.

La posición del pico (111), tanto del Py como del FePt, permanece aproximadamente constante, independientemente del espesor de las capas y de si ha crecido sobre el óxido nativo amorfo del sustrato de Si o sobre la capa de Py o de FePt. A partir de las posiciones angulares de los picos de difracción y utilizando la ley de Bragg encontramos $d_{111-Py} = 0.204(8)$ nm y $d_{111-FePt} = 0.222(4)$ nm, lo que nos permitió estimar los valores de los parámetros de red, $a_{Py} \sim 0.35(1)$ nm y $a_{FePt} \sim 0.385(7)$ nm, este último cercano al que se obtiene del valor de d_{111} presentado en el capítulo 4 (Fig. 4.4) para una película única de FePt de 100 nm de espesor, $a_{FePt} \sim 0.383(2)$ nm. El parámetro de red

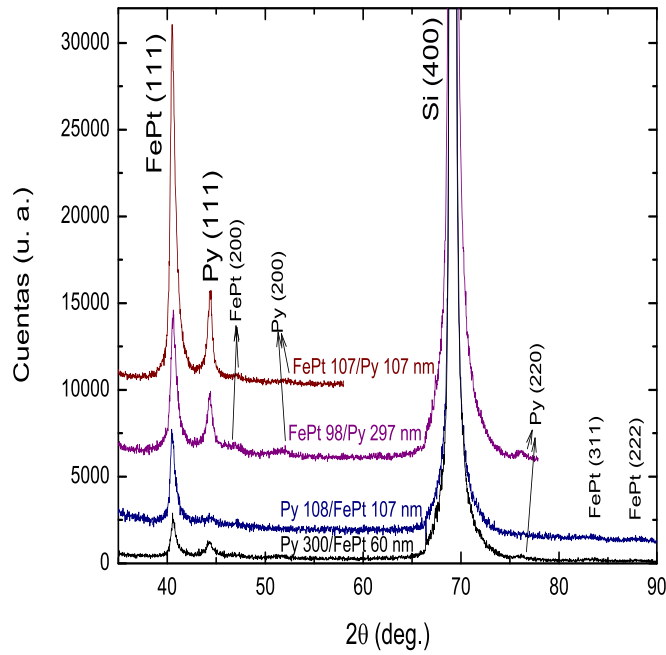


Figura 6.2: Difractogramas de rayos-X para algunas muestras seleccionadas. Aparte del pico correspondiente al sustrato de silicio (400), en todas las bicapas pueden observarse picos tanto de FePt como de Py. La intensidad relativa es muy dependiente del espesor de cada película y si se encuentra en la parte superior o inferior de la bicapa.

de Py ha sido reportado con un valor $a = 0.3546 \text{ nm}$ [130] a partir de un difractograma de rayos-X para un polvo de Py de composición $\text{Fe}_{25}\text{Ni}_{75}$ y una estructura cristalina fcc, nuevamente en buen acuerdo con lo hallado en nuestras mediciones.

A partir de estos resultados, podemos estimar que el desajuste entre los parámetros de red de ambos materiales es $\sim 8\%$. Este valor es lo suficientemente grande para que en Py (FePt) crecido sobre FePt (Py) no sea energéticamente favorable producir una deformación elástica que copie la red subyacente y las películas desarrollen una componente de la tensión en la interfaz que dependa del espesor. De todas formas las películas son, en general, relativamente gruesas lo que hace que los efectos en la interfaz no necesariamente se propaguen en toda la película. Es necesario aclarar que los parámetros de red han sido calculados utilizando solamente la reflexión (111), ya que es la más intensa, por lo que simplemente es utilizado de forma comparativa entre ambos materiales.

En este caso, el análisis detallado de la textura es más impreciso debido a la poca intensidad de las reflexiones. Si comparamos la textura a través de la relación de los picos (111) y (200) para Py crecido sobre FePt vemos que disminuye cuando aumenta el espesor, resultando $I_{111}/I_{200} \sim 6.7$ para la más delgada de 107 nm de espesor y $I_{111}/I_{200} \sim 3.4$ para la muestra más gruesa de 297 nm. El cambio no es atribuible al material de la capa inferior, ya que en ambos casos el espesor del FePt es el mismo $\sim 100 \text{ nm}$. Para explicar este resultado y confirmar si existe una tendencia sistemática,

hubiera sido necesario estudiar a través de difractogramas de rayos-X la serie completa de películas. La textura del Py sobre el óxido de silicio puede extraerse de la muestra de Py 300/FePt 60 nm, dando como resultado $I_{111}/I_{200} \sim 2.5$ y $I_{111}/I_{220} \sim 2.1$. La intensidad de las reflexiones correspondientes al Py en la muestra Py 108/FePt 107 nm decaen tanto al encontrarse por debajo de la capa de FePt, que las mismas dejan de ser visibles. Notar que el Py no parece desarrollar una textura tan marcada como el FePt, ya que la relación de intensidades del pico (111) tanto con el pico (200) como con el (220) no es tan grande considerando que para granos distribuidos al azar debería ser $I_{111}/I_{200} \sim 1.8$ y $I_{111}/I_{220} \sim 1.0$. Para FePt, como ya hemos visto en capítulos anteriores, hallamos nuevamente una textura muy marcada en la dirección (111).

6.3. Medidas de magnetización

Tanto el FePt como el Py presentan un espesor crítico por encima del cual los dominios magnéticos pasan de ser planares a *stripes*. La diferencia radica principalmente en que el espesor crítico del Py, que está en el rango $110 \lesssim d_{\text{cr-Py}} \lesssim 200$ nm [128, 131, 132], es considerablemente mayor que en el caso del FePt en donde $d_{\text{cr-FePt}} \sim 32$ nm para $P_{\text{Ar}} = 3$ mTorr (capítulos 3 y 5). Las películas de Py también presentan una coercitividad menor y *stripes* con un período apreciablemente mayor. Al poner en contacto dos películas ferromagnéticas, magnéticamente blandas pero con coercitivos considerablemente distintos, la estructura magnética de ambas se acopla debido principalmente a la interacción de intercambio en la interfaz, dando lugar a un nuevo sistema con características comunes pero que, en principio, no corresponden a uno u otro material en particular. Si ambas capas están fuertemente acopladas, esperamos que el sistema se comporte como una estructura única, mientras que si la interacción es débil, esperamos que ambos sistemas evolucionen de manera casi independiente.

Estudiamos las propiedades magnéticas de la serie de bicapas Py/FePt utilizando técnicas de microscopía de fuerza magnética, magnetometría de muestra vibrante y magnetometría de efecto Kerr magneto-óptico (MOKE). Una característica interesante de esta última técnica es que la longitud de penetración es del orden de 10-20 nm, lo que nos permite separar el comportamiento magnético de toda la muestra observando lo que ocurre solamente en la capa superior. En este capítulo no nos enfocaremos en los factores que dan lugar a la aparición de la anisotropía perpendicular, sino que el interés está centrado en el acople entre las capas que conforman las muestras y los efectos que provoca en la estructura de dominios magnéticos.

6.3.1. Curvas de magnetización DC, medidas de VSM y MOKE

Los sistemas compuestos por al menos una capa magnéticamente blanda, (es decir, materiales relativamente fáciles de magnetizar y de revertir su magnetización) acoplada con un ferromagneto duro son conocidos comúnmente como “*exchange spring magnets*”. Este tipo de materiales compuestos tienen una amplia variedad de potenciales aplicaciones tecnológicas, por ejemplo, en almacenamiento de información magnético [133]. Esto se debe a que se combinan propiedades de la fase dura, como una alta estabilidad térmica, con las ventajas de la fase blanda, tales como un campo coercitivo relativamente bajo y una alta permeabilidad. En la Fig. 6.3 se presenta un esquema en el que se destacan las propiedades más importantes de cada fase magnética.

En nuestro caso, el Py está en contacto con el FePt, que puede asociarse a la fase relativamente dura. Como ya se ha discutido en la sección 6.2, ambos materiales se encuentran en una fase cristalina químicamente desordenada y presentan una componente de anisotropía magnética uniaxial normal al plano, que da origen a una estructura de dominios en *stripes*.

Las medidas de VSM se realizaron siguiendo el mismo procedimiento y con el mismo equipo que en los capítulos anteriores. Para las mediciones MOKE utilizamos un láser de longitud de onda $\lambda = 632 \text{ nm}$ (rojo) con una potencia incidente de aproximadamente 1 mW, polarización incidente vertical y configuración longitudinal. El campo externo aplicado es paralelo al plano de las películas, con un campo máximo disponible de 4000 Oe.

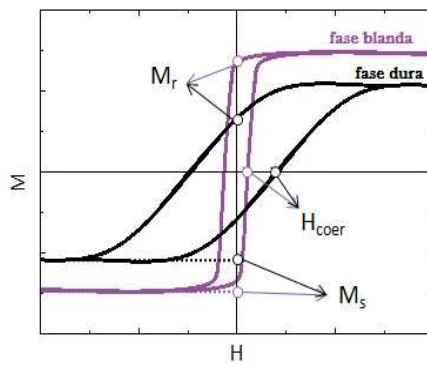


Figura 6.3: Representación esquemática de los lazos de histéresis típicos para un ferromagneto duro, con un relativamente alto campo coercitivo y una magnetización de saturación baja, y la fase blanda con una saturación mayor, un campo coercitivo pequeño y una remanencia alta.

Las curvas en el VSM fueron normalizadas por el volumen total de las muestras, por lo que la magnetización de saturación medida resulta en un promedio de $M_{s-\text{FePt}}$

y M_{s-Py} pesado por los espesores de cada capa. De las muestras control de Py con espesores 24, 114 y 313 nm pudimos extraer $M_{s-Py} \sim 800(60)$ emu/cm³, en completo acuerdo con el valor reportado [134] $M_s = 796$ emu/cm³. Debido a que en esta serie de películas la adherencia del Py al sustrato es frágil, los valores de la magnetización de saturación pueden diferir de lo esperado, debido mayormente a la incerteza en el cálculo del área de las muestras.

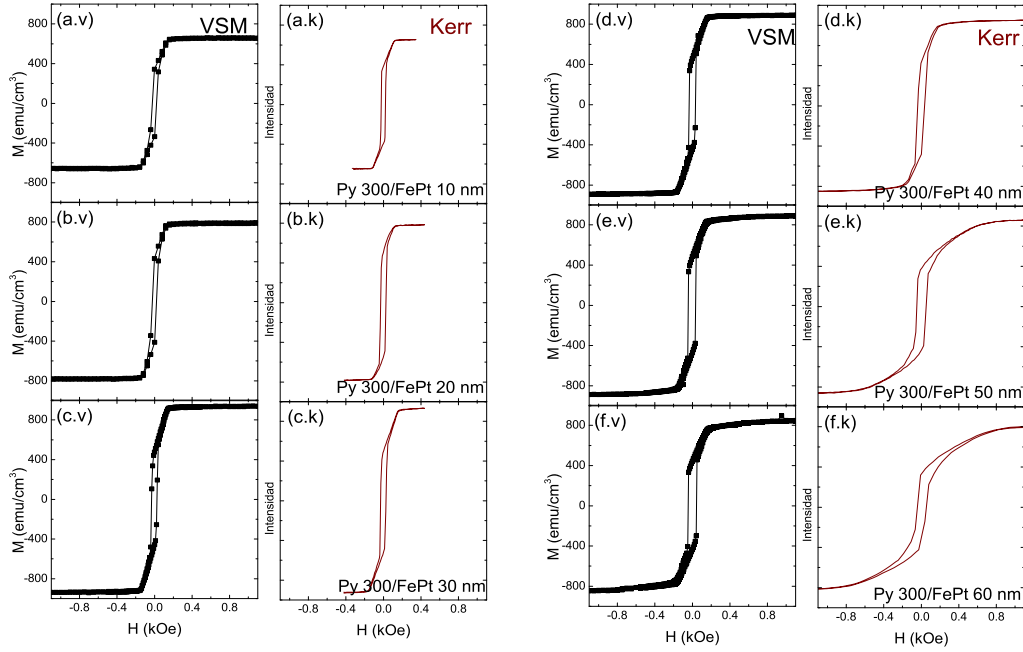


Figura 6.4: Medidas de VSM y MOKE para la serie A, con una capa de Py de espesor nominal constante $d_{Py} \sim 300$ nm y la capa superior de FePt con espesor que varía en el rango $10 \text{ nm} \leq d_{FePt} \leq 60 \text{ nm}$. La longitud de penetración del haz en las medidas de magnetometría por efecto Kerr es de aproximadamente 20 nm, por lo que en las bicapas con $d_{FePt} \gtrsim 10 - 20$ nm la medida en Kerr solo refleja la evolución de la magnetización en el FePt. Las letras “v” o “k” en las etiquetas de cada panel hacen referencia a que la curva de histéresis fue medida por VSM o MOKE, respectivamente.

En las Figs. 6.4 y 6.5 comparamos lazos de histéresis medidos usando VSM y MOKE, con el campo H aplicado en dirección paralela al plano de la película. En ambas series todas las curvas de magnetización muestran la forma típica que resulta de una configuración de dominios tipo *stripes*.

En las mediciones de la serie A se puede notar que mientras el FePt se mantiene por debajo de su espesor crítico, $d_{cr-FePt} \lesssim 40$ nm, las medidas VSM y Kerr coinciden en sus características principales. Cuando $d_{FePt} = 50$ y 60 nm se pueden observar algunos cambios importantes (Figs. 6.4 (e.k) y (f.k)), el campo de saturación en el Kerr (que corresponde a la superficie de la capa de FePt) es mayor y la dependencia funcional del lazo entre la remanencia y el campo de saturación H_s deja de ser lineal, a diferencia de lo que debería ocurrir en muestras con *stripes*, debido a la alineación con el campo

de la componente de la magnetización fuera del plano. La estructura de dominios en la superficie de la muestra se vuelve más complicada debido a la interacción entre los *stripes* formados en el Py y en el FePt, por lo que los *stripes* correspondientes al FePt ya no rotan de forma lineal con el campo aplicado. La diferencia entre el comportamiento de la bicapa como un todo y el FePt superficial parece indicar que a medida que aumenta el espesor de las capas, el acople (efecto netamente de la interfaz) decae en intensidad cerca de la superficie. Tanto el aumento de H_s como el cambio en la rotación de los dominios del FePt se observan claramente en imágenes MFM con campo externo aplicado que presentaremos en la sección 6.3.2. Como se discutirá más adelante, en la Fig. 6.11 puede notarse que cuando se aplica un campo mayor a la saturación del Py, comienzan a diferenciarse los *stripes* de FePt. También es posible notar este efecto en la bicapa de 40 nm de espesor de FePt, cercano al espesor crítico de este material. Si bien las medidas de VSM y MOKE son similares, empiezan a notarse algunas diferencias relacionadas a la formación de una segunda estructura de *stripes*.

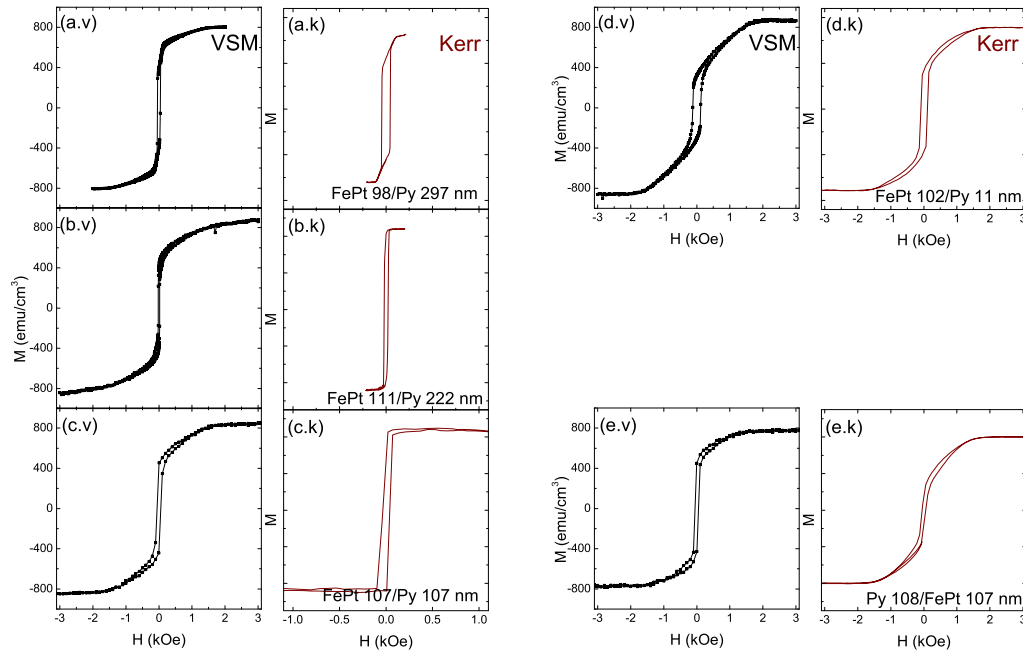


Figura 6.5: Medidas de VSM y MOKE para la serie B (paneles a-d), con una capa de FePt de espesor nominal constante $d_{\text{FePt}} \sim 100$ nm y la capa superior de Py con espesor que varía en el rango $11 \text{ nm} \leq d_{\text{Py}} \leq 297$ nm. También se incluyó una muestra de Py 108/ FePt 107 nm (panel e). Exceptuando la bicapa con 11 nm de Py, en esta serie las medidas magnéticas por efecto Kerr solo reflejan la evolución de la magnetización en la capa superior.

En las medidas presentadas en la Fig. 6.5, correspondientes a bicapas de la serie B, notamos también algunas diferencias en la forma de las curvas de histéresis. En particular, si comparamos las bicapas FePt 107/Py107 nm y Py 108/FePt 107 nm (Figs. 6.5 (c.k) y (e.k), respectivamente) observamos que en las mediciones de MOKE

la primera tiene una forma más cuadrada, indicando que no habría *stripes* cerca de la superficie del Py, mientras que para la bicapa con FePt en la superficie, la forma es similar a lo obtenido con el VSM. También cabe destacar que, a pesar de observar en las Figs. 6.5 (b.v) y en (b.k) características que indican la presencia de *stripes* en FePt 111/Py 222 nm, la diferencia en el campo de saturación entre ambas medidas es notable siendo $H_{s-\text{Py}} \ll H_{s-\text{bicapa}}$. Al igual que en la serie anterior, estos resultados nos sugieren que aunque la interacción en la interfaz es lo suficientemente fuerte como para que ambas capas reviertan su magnetización a un mismo campo, a medida que aumentan los espesores comienzan a predominar, sobre todo en la superficie, características propias de cada material.

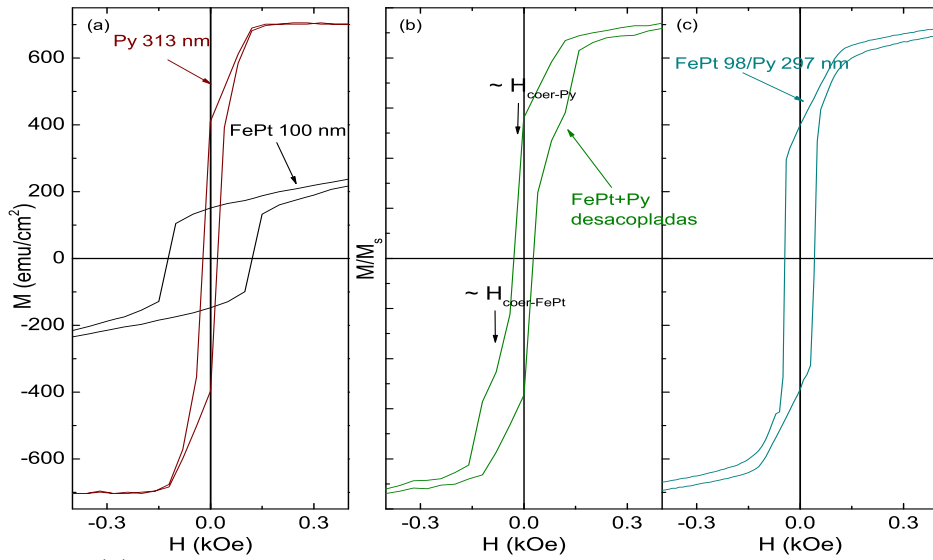


Figura 6.6: (a) Mediciones de magnetización en función del campo magnético para películas de FePt y Py con ~ 100 y 300 nm de espesor, respectivamente, tomadas de forma independiente. (b) Suma directa de las curvas de (a), la cual corresponde al caso donde las dos películas están desacopladas. En el gráfico también están señalados los campos coercitivos de FePt y Py. (c) Lazo correspondiente a la bicapa FePt 100/Py 297 nm medida en el VSM.

Notar que en la forma de las curvas de magnetización de las Figs. 6.4 y 6.5 no se observan los saltos intermedios característicos de dos materiales no acoplados [30, 135], sino que comparten un mismo campo coercitivo. Esto nos indica, como se discutirá en detalle más adelante, la existencia de un acople debido a la interacción de intercambio entre ambas capas a través de la interfaz. A modo de comparación en la Fig. 6.6 (b) se muestra la suma directa de mediciones de magnetización de dos películas de FePt y Py (normalizadas por los respectivos espesores), que correspondería al lazo de un sistema completamente desacoplado. Puede apreciarse que la curva es muy diferente a la medida realizada en la bicapa FePt 100/Py 297 (Fig. 6.6 (c)).

Existen diferentes formas de caracterizar el proceso de reversión magnético en un

sistema de dos o más capas ferromagnéticas acopladas, generalmente a través de simulaciones micromagnéticas [133, 135] o derivando expresiones analíticas [136]. En la mayor parte de estos métodos se utiliza el espesor de la capa relativamente blanda d_s como parámetro fundamental para determinar el régimen, acoplado o desacoplado, en el que se encuentra el sistema. Uno de los modelos usualmente aplicado en el caso de *exchange spring magnets* describe la situación de una película delgada d_s entre dos capas de un material magnéticamente duro [135]. El modelo predice que para espesores menores que un cierto espesor crítico $d_{\text{cr}-s}$, la fase blanda se encuentra rígidamente anclada a la capa más dura, por lo que el sistema en su conjunto rota solidariamente. Se ha encontrado que el valor del espesor crítico de la capa blanda se acerca al doble del ancho de las paredes de dominio δ_h en la fase dura [135, 136] $d_{\text{cr}-s} \sim \delta_h = \pi\sqrt{A_h/K_h}$, donde A_h y K_h son, respectivamente, las constantes de intercambio y de anisotropía de la capa dura. En nuestro caso estimamos, donde el material relativamente blando es el Py, un valor $d_{\text{cr}-s} \sim 20$ nm, considerando los valores de A y K_{\perp} para el FePt en la fase cristalina A1 ya discutidos en el capítulo 4. Hay que ser cuidadosos al aplicar este modelo a nuestro sistema ya que la diferencia entre los campos coercitivos de ambos materiales por separado no es tan grande y, cuando la capa de Py es lo suficientemente gruesa, observamos que la magnetización en el FePt se revierte antes de lo esperado para una capa única. Es decir, el FePt no puede considerarse totalmente anclado y fijo como en el modelo convencional de *exchange spring magnets*, aunque el acople existe y ambas capas revierten su magnetización en conjunto. El campo coercitivo en el que la bicapa revierte su magnetización depende básicamente de la relación entre el volumen de las capas. Bajo la suposición de que las capas están totalmente acopladas a lo largo de todo el espesor, podemos estimar $\langle H_{\text{coer}} \rangle$ como un promedio pesado por los espesores de cada capa:

$$\langle H_{\text{coer}} \rangle = \frac{d_{\text{FePt}} H_{\text{coer}}(d_{\text{FePt}}) + d_{\text{Py}} H_{\text{coer}}(d_{\text{Py}})}{d_{\text{FePt}} + d_{\text{Py}}}, \quad (6.1)$$

donde $H_{\text{coer}}(d)$ es el campo coercitivo obtenido de forma experimental de curvas de magnetización por VSM para películas únicas de un espesor similar al correspondiente al material de la bicapa. Para los espesores variables de FePt de la serie A utilizamos mediciones de la serie de FePt con variación en espesor del capítulo 3 y para los espesores variables de Py de la serie B, las mediciones de las muestras de control especificadas en la tabla 6.1.

En la Fig. 6.7 mostramos la evolución del campo coercitivo con el espesor de la capa variable para ambas series. En la serie A, se observa que a partir de 20 nm de espesor de la capa de FePt, H_{coer} aumenta con d_{FePt} . Lo contrario ocurre en la Serie B, en la cual el campo coercitivo disminuye de forma abrupta cuando el espesor de

Py aumenta de 11 a 107 nm. Ambos comportamientos son completamente consistentes con el hecho de que $H_{\text{coer-FePt}} > H_{\text{coer-Py}}$ y que el H_{coer} de la bicapa está dado por el promedio pesado por el espesor de cada material, $\langle H_{\text{coer}} \rangle$. A pesar de que con una técnica se censa la bicapa completa y con la otra solo la película superficial, es notable que no haya diferencias significativas entre las medidas realizadas con VSM y con Kerr, indicando nuevamente que la inversión de la magnetización de los dominios magnéticos a medida que el campo externo se revierte es simultánea.

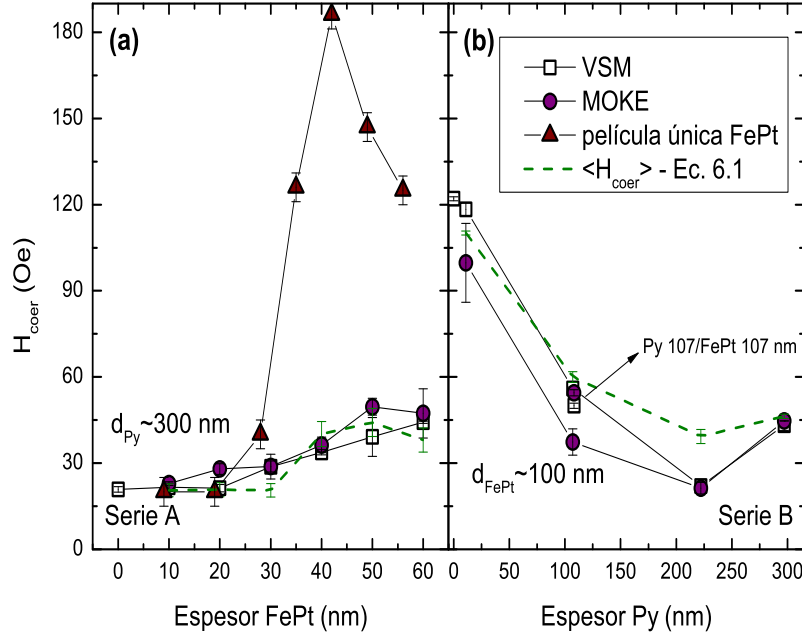


Figura 6.7: Campo coercitivo en función del espesor de la capa superior: FePt para la serie A y Py para la serie B. En ambos paneles, el dato $d = 0$ corresponde a una película sin la capa superior: Py 313 nm, de la serie de control, en (a) y FePt 100 nm, del capítulo 4, en (b). A modo de comparación, en (a) agregamos los valores de H_{coer} para una película única de FePt, correspondiente a la serie del capítulo 3. En (b) se marcan los símbolos correspondientes a las medidas en VSM y MOKE de la muestra de Py 108/FePt 107 nm, graficada junto a FePt 107/Py 107 nm. Las líneas punteadas corresponden a la estimación de la Ec. 6.1, suponiendo que las capas están totalmente acopladas.

En la Fig. 6.7 también se incluyen los valores estimados de $\langle H_{\text{coer}} \rangle$ a través de la Ec. 6.1. En todas las bicapas existe un acuerdo razonable entre el campo coercitivo obtenido de las mediciones y los que predice un modelo en el cual las capas están totalmente acopladas. En la serie A se observa que para valores pequeños de d_{FePt} no hay una variación apreciable, debido a que el FePt se encuentra por debajo del espesor crítico y ambos coercitivos se mantienen en el orden de ~ 20 Oe. Cuando $d_{\text{FePt}} > d_{\text{cr-FePt}}$, el campo coercitivo en el FePt crece abruptamente para luego decaer a medida que sigue aumentando el espesor, en acuerdo con el comportamiento del FePt en películas únicas aunque con valores significativamente menores (Fig. 6.7 (a)) debido a la interacción

con la capa de Py. En la serie B, la forma de la curva M vs. H en las medidas por efecto Kerr nos permite concluir que no se forman *stripes* en la capa superior hasta la muestra con $d_{\text{Py}} = 222$ nm, encontrándose esta última muy cerca del espesor crítico ya que comparte un coercitivo aún bajo con una región lineal entre la remanencia y la saturación. Para realizar el promedio, utilizamos el mismo valor de campo coercitivo $H_{\text{coer-sin stripes}} \sim 2$ Oe aunque la predicción usando la Ec. 6.1 resulta en un valor un poco mayor que el medido. En las bicapas con la capa superior de Py más delgadas (11 y 107 nm) el coercitivo obtenido por el Kerr es un poco más pequeño que el medido con el VSM. Esto puede deberse a que en ambos casos la capa de Py se encuentra por debajo del espesor crítico y, a medida que nos alejamos de la interfaz el acople disminuye.

6.3.2. Microscopía de fuerza magnética

Las imágenes de los dominios magnéticos fueron tomadas con un microscopio de fuerza atómica/magnética, utilizando el mismo equipo y protocolo de medición descrito en los capítulos anteriores. Las medidas son generalmente en el estado remanente, antes de la medición y fuera del microscopio, las muestras se saturan con un campo magnético de aproximadamente 5 kOe. También se presentan imágenes adquiridas con campo aplicado durante la medición, paralelo al plano de la muestra. Este campo se aplica con un pequeño electroimán montado dentro del microscopio que puede variarse en forma continua en el rango ± 300 Oe. El contraste de las imágenes de MFM corresponde al gradiente de fuerza vertical $\left(\vec{F} \propto m_{\text{tip}} \frac{\partial \vec{H}_{\text{disp}}}{\partial z}\right)$, donde \vec{H}_{disp} es el campo magnético disperso debido a la estructura magnética de la película y se asume que la punta del MFM se magnetiza en sentido longitudinal, perpendicular al plano de la muestra.

Exceptuando las muestras de control de Py de 114 y 24 nm, encontramos dominios magnéticos tipo *stripes* en todos los casos. En las bicapas de la serie A con espesores de FePt hasta 40 nm se puede observar que predomina el tipo de dominios del Py, con *stripes* de mayor período y paralelos, no siendo observables los efectos debidos a la capa superior de FePt. Desde la capa de FePt de 40 nm en adelante se esperaría un cambio en la estructura de *stripes*, ya que se encuentran por encima del espesor crítico del FePt $d_{\text{cr-FePt}} \sim 32$ nm (ver capítulo 3). Como se puede observar en la Fig. 6.8, cuando $d_{\text{FePt}} > d_{\text{cr-FePt}}$ encontramos una estructura compuesta por dos períodos, uno de menor longitud de onda que por sus características se atribuye a la capa de FePt, y uno mayor que corresponde al Py y que influye en la magnetización de la capa superior. A pesar de encontrar dos estructuras de dominios, ambas están fuertemente correlacionadas, de forma consistente a las medidas de magnetización de la sección anterior. El campo coercitivo aumenta, debido al mayor aporte de una capa de FePt más gruesa, pero ambas capas se revierten de forma simultánea.

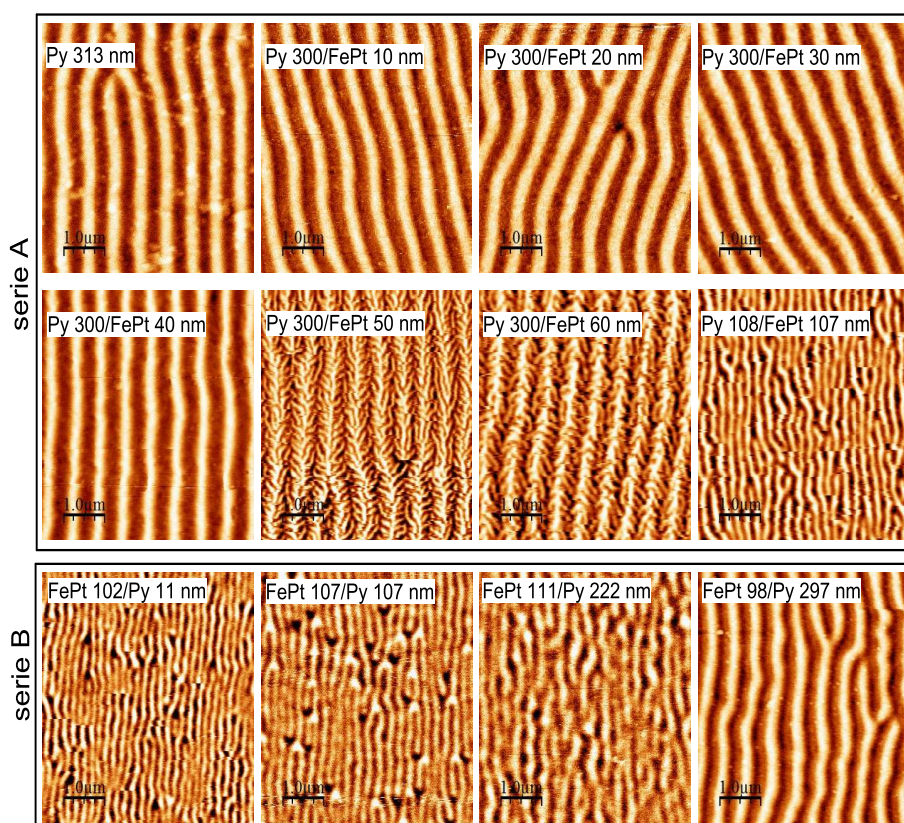


Figura 6.8: Imágenes de MFM de las series A y B de bicapas, más la muestra de control correspondiente Py 313 nm. Las muestras de Py de 114 y 24 nm de espesor fueron omitidas ya que presentan dominios planares. El tamaño de todas las imágenes es de $5 \times 5 \mu\text{m}$.

En la serie B, tenemos una capa inferior de FePt de espesor nominal constante ($d_{\text{FePt}} \sim 100 \text{ nm} > d_{\text{cr}}$) con una cubierta de Py de espesores 11, 107, 222 y 297 nm. La serie de muestras de control nos indica que para $d_{\text{Py}} = 11$ y 107 nm deberíamos encontrar dominios en el plano, mientras que en las dos más gruesas se esperan *stripes*. En este caso vemos nuevamente que la capa superior, que debería tener dominios planares, copia la estructura en *stripes* de la capa inferior. También vemos *stripes* en las muestras de $d_{\text{Py}} = 222$ y 297 nm, pero en la primera el semiperíodo es menor y las tiras poseen propiedades típicas del FePt (más desordenadas, con terminaciones y bifurcaciones) mientras que en la más gruesa, al menos en la superficie, se ve que el tipo de estructura dominante es la asociada a Py.

Es interesante comparar las muestras Py 108/FePt 107 nm y FePt 107/Py 107 nm, en las cuales tenemos la capa de Py con dominios planares y una capa de FePt con *stripes*, ambas con el mismo espesor, pero podemos observar de forma directa a través de las medidas por efecto Kerr y las imágenes MFM qué es lo que ocurre en el Py y el FePt alternativamente. En primer lugar, tanto el campo coercitivo como el campo de saturación y la forma general de la curva de histéresis no parecen cambiar en las

medidas de VSM (Fig. 6.5 (c.v) y (e.v)) pero sí hay un cambio en la curva en Kerr para la bicapa con Py en la parte superior (Fig. 6.5 (c.k)), que tiene la forma típica que indicaría magnetización planar. Sin embargo, en las imágenes de MFM se observan *stripes* en ambos casos, con características similares tanto en la forma (Fig. 6.8) como en el semiperíodo (Fig. 6.9). La microscopía MFM no es una técnica estrictamente superficial sino que es sensible al campo disperso fuera del material, que es de largo alcance. Por lo tanto, que se observen *stripes* en las imágenes de MFM no permite concluir de forma directa que en la capa superficial exista esta estructura.

En la Fig. 6.9 presentamos la dependencia del semiperíodo de los *stripes* para las distintas series de bicapas. Los distintos períodos fueron calculados usando la opción transformada rápida de Fourier (FFT) del software WSxM 5.0 [120]. En ambas series (A y B) pueden distinguirse dos zonas: la primera en la cual el espesor de la capa superior es menor que d_{cr} y una segunda en la cual los dos materiales presentan dominios en *stripes*. En el primer caso, debido al acople entre las capas, los dominios en *stripes* de la película inferior inducen *stripes* también en la superior, aunque no necesariamente se propaga en todo el espesor. El sistema se comporta como una sola entidad, aumentando el período a medida que aumenta el espesor efectivo total de forma aproximadamente $\propto \sqrt{d}$, como predicen tanto el modelo de Murayama [44] y como el de Kooy et. al. [124].

Las mediciones de magnetización y microscopía analizadas hasta ahora nos indican que el acople entre ambas capas en la interfaz es lo suficientemente fuerte como para que la magnetización se revierta a un mismo campo coercitivo. Sin embargo, notar que cuando el espesor de la capa superior de Py (Serie B) se incrementa, algunas características varían cerca de la superficie, especialmente en cuanto a la estructura y morfología de los dominios magnéticos. Las medidas de magnetometría Kerr muestran indicios de la desaparición de los *stripes* en las muestras FePt 107/Py 107 nm y FePt 111/Py 222 nm (en la bicapa FePt 98/Py 297 hay *stripes*, pero estos son debido a que $d_{\text{Py}} > d_{\text{cr-Py}}$ y no inducidos por el FePt) y una disminución de H_s (Fig. 6.5). Además, en ningún caso el semiperíodo de los dominios magnéticos coincide con el valor que se estima si se asume que las capas están totalmente acopladas pero, como se observa en la Fig. 6.9, parece aumentar debido al incremento del espesor total de la bicapa.

En la serie A (ver Fig. 6.8), el semiperíodo aumenta gradualmente con el espesor de la capa superior de FePt, para luego tener una caída en las muestras con $d_{\text{FePt}} = 50$ y 60 nm, en las cuales se vuelve aproximadamente al valor de la película de Py sin cubrir con FePt. En estos dos últimos casos tenemos una estructura de dominios compuesta, en la cual se observan *stripes* con un período más pequeño que a su vez parecen copiar el tipo de tiras típicas del Py.

En capítulos anteriores hemos utilizado con éxito el modelo de Murayama [44] para caracterizar esta variación a través de la Ec. 1.15:

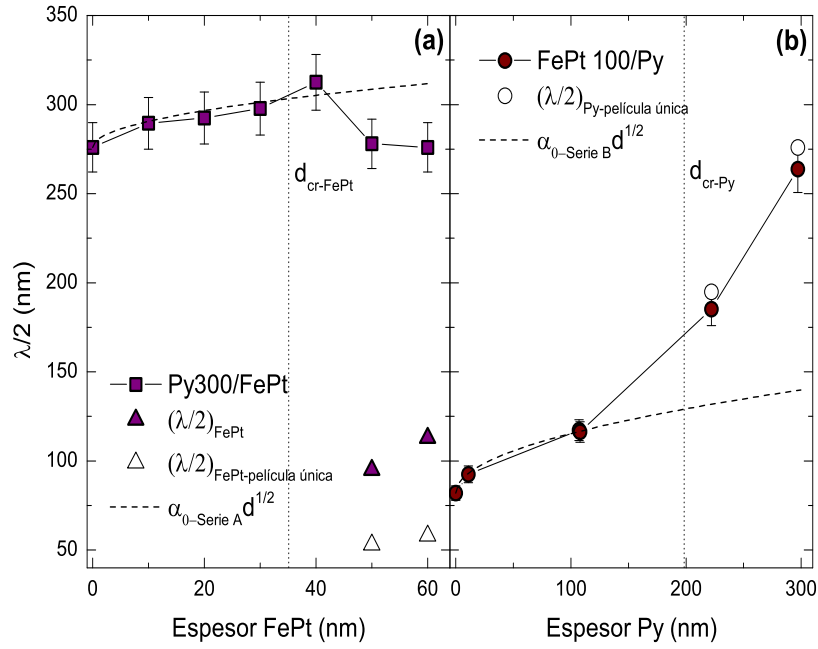


Figura 6.9: Semiperíodo de las series A (a) y B (b) en función del espesor de la capa superior. Los símbolos vacíos son datos obtenidos en películas únicas de FePt y Py. Las líneas verticales indican el espesor crítico para películas de FePt y Py. Las líneas punteadas son un ajuste con una función de la forma $\alpha_0 \sqrt{d}$ de las muestras en las cuales el espesor de la capa superior es menor que el crítico. Los triángulos llenos del panel (a) corresponden al período asociado al FePt de las bicapas que se observa para $d \gtrsim 40$ nm. En (b) se agregó la muestra de Py 108/FePt 107 nm como comparación con FePt 107/Py 107 nm.

$$\frac{\lambda_s}{2} = \left[\frac{A\pi^2}{K_\perp} (Q + 1) \right]^{1/4} \sqrt{d} = \alpha_0^M \sqrt{d}. \quad (6.2)$$

La Ec. 6.2, válida para $Q \rightarrow 0$, describe la evolución del semiperíodo con el espesor en función de la constante de intercambio A , el espesor de la película d , la magnetización de saturación M_s y el factor de calidad Q . La dependencia del semiperíodo con el espesor también ha sido tratada por los autores Kooy, et. al. [124], pero bajo la suposición de $Q \geq 1$, es decir, para el caso de magnetización perpendicular al plano. Sin embargo, también ha sido utilizada con buenos resultados para muestras con $Q \sim 0.4$ [18, 20]. La expresión para el semiperíodo en esta situación es:

$$\frac{\lambda_s}{2} = \left[\frac{\pi^2 \sqrt{AK_\perp}}{8M_s^2} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{2\pi M_s^2}{K_\perp}} \right) \right]^{1/2} \sqrt{d} = \alpha_0^K \sqrt{d}. \quad (6.3)$$

Notar que también se predice una dependencia como la raíz cuadrada del espesor, aunque con distinta constante α_0 .

Las Ecs. 6.2 y 6.3 nos permiten estimar, a partir de constantes características de cada material, un valor para el parámetro α_0 . La elección de las constantes apropiadas

no es directa ya que, en principio, tendremos la composición de los dos materiales que contribuyen a la estructura de los *stripes*. Una forma de tener en consideración este efecto es realizar un promedio pesado por el espesor de las constantes de intercambio A , magnetización de saturación M_s y factor de calidad Q . Para el FePt utilizamos los resultados de las muestras del capítulo 4 tanto para la saturación $M_{s-\text{FePt}} = 1050 \pm 60$ emu/cm³ como para el factor de calidad $Q_{\text{FePt}} \sim 0.32(3)$ y $A_{\text{FePt}} \sim 0.6 \times 10^{-6}$ erg/cm [18]. La magnetización de saturación del Py fue calculada a partir de mediciones de VSM de la muestra de control de 313 nm, resultando $M_{s-\text{Py}} = 800 \pm 60$ emu/cm³. Ha sido reportada una fuerte dependencia de la constante de intercambio del Py con las técnicas de fabricación y el espesor de la película [137, 138], encontrando un rango de valores que oscila entre $A = 1.03 \times 10^{-6}$ erg/cm [139] para muestras de Py de 60-160 nm, fabricadas por *sputtering* RF y expuestas a un tratamiento térmico a 350°C, hasta $A = 3.6 \times 10^{-6}$ erg/cm [140] para películas más gruesas de 850-1100 nm de espesor. Para películas sin tratamientos térmicos, con espesores 200-300 nm encontramos en diversas fuentes un valor estimado de $A_{\text{Py-A}} = 1.143 \times 10^{-6}$ erg/cm [138, 141, 142], aunque algunos autores llegan a valores más bajos $A = 1.05 \times 10^{-6}$ erg/cm [137]. Sin embargo, el método de medición de esta última referencia no es por medio de ondas de spin estacionarias en experimentos de Resonancia Ferromagnética, que es el más comúnmente utilizado, sino que se hizo con mediciones de magnetorresistencia. En el trabajo de Kim et al. [138] se incluye un gráfico de la constante de intercambio en función del espesor de películas de Py, en donde se reporta que para películas más delgadas el valor de A también se reduce notablemente. Por lo tanto, en nuestros cálculos utilizaremos $A_{\text{Py-B}} = 0.22 \times 10^{-6}$ erg/cm para $d_{\text{Py}} < 100$ nm. Para estimar el factor de calidad del Py consideramos conocido $d_{\text{cr-Py}} \sim 200$ nm, que es el que sugieren las mediciones de magnetización y está en concordancia con valores reportados [128, 131], y recurrimos a la Ec. (4) del capítulo 5 que relaciona ambas cantidades por medio de una ecuación paramétrica, resultando $Q_{\text{Py}} \sim 0.035(8)$.

Si bien aproximar las constantes por un promedio pesado no es completamente correcto, debido a que el acople no se extiende a todo el volumen, es necesario tener en consideración que ambos materiales contribuyen a la formación de los *stripes* aún cuando d_{Py} o $d_{\text{FePt}} < d_{\text{cr}}$. En la Fig. 6.9 agregamos en línea punteada un ajuste de la forma $\lambda_s/2 = \alpha_0 \sqrt{d_{\text{tot}}}$, donde $\alpha_{0-\text{serieA}} = 4.6(5)$ nm^{1/2} y $\alpha_{0-\text{serieB}} = 3.34(5)$ nm^{1/2}. A pesar de que en la serie B no contamos con muchos datos en los cuales $d_{\text{Py}} < d_{\text{cr-Py}}$, la tendencia de un aumento del período con el espesor es clara. Con los parámetros discutidos en el párrafo anterior es posible estimar el factor de proporcionalidad en las Ecs. 6.2 y 6.3, $\alpha_{0-\text{SerieA}}^M \sim 7.8$ nm^{1/2} y $\alpha_{0-\text{SerieA}}^K \sim 7.1$ nm^{1/2}, resultando que la estimación a partir de modelos teóricos es mayor a la obtenida de las medidas experimentales. Esta diferencia sugiere que pueden haberse utilizado valores más grandes de la constante de intercambio o más pequeños de M_s y Q , lo que podría

interpretarse como una sobreestimación de la contribución del Py en el promedio de las constantes. Recordemos que ya hemos tenido discrepancias en los capítulos anteriores al utilizar la Ec. 6.2 con películas de FePt. También hay que considerar que el espesor efectivo no es necesariamente igual al total, ya que hemos observado previamente en medidas de magnetometría Kerr cambios en las propiedades magnéticas cerca de la superficie que nos permiten concluir que la estructura de dominios en *stripes* no se propaga por todo el volumen.

En la serie A, cuando $d_{\text{FePt}} > d_{\text{cr-FePt}}$, podemos diferenciar dos semiperíodos en las imágenes de MFM (imágenes centrales de la Fig. 6.8), al mayor lo asociamos al Py y al menor, al FePt. Con la herramienta FFT del Software WSxM es posible filtrar un período por vez, lo que nos permite separar ambas contribuciones y medir $(\lambda_s/2)_{\text{Py}}$ y $(\lambda_s/2)_{\text{FePt}}$ de forma independiente (Fig. 6.10).

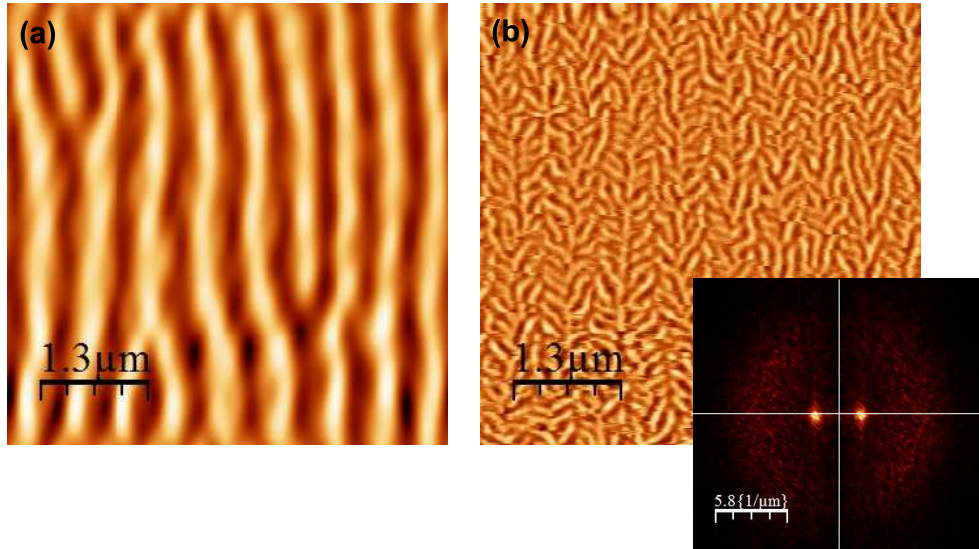


Figura 6.10: Descomposición de los dos períodos que forman la estructura de *stripes* de la muestra de Py 300/FePt 50 nm (ver Fig. 6.8). La imagen (a) representa el período mayor correspondiente a la contribución del Py y (b) el período más pequeño del FePt. En el recuadro se observa la imagen en el espacio recíproco k ($1/\mu\text{m}$). Los dos puntos más intensos corresponden al período graficado en (a) y la nube más dispersa y de menor intensidad, al gráfico (b).

En este caso el período mayor decrece abruptamente, volviendo al valor medido para la película de Py sin FePt. Sin embargo, como se muestra en la Fig. 6.9, $(\lambda_s/2)_{\text{FePt}}$ es mayor que lo esperado para una película única de FePt de 50 o de 60 nm [18], indicando que ambas capas siguen acopladas por algún mecanismo de interacción. En la Serie B ya no es posible diferenciar dos períodos, probablemente porque el más pequeño se manifiesta solo cerca de la interfaz FePt/Py, al igual que en la serie A, el valor de $(\lambda_s/2)_{\text{Py}}$ medido también coincide de forma aproximada con los valores correspondientes a una película única, aunque es algo menor.

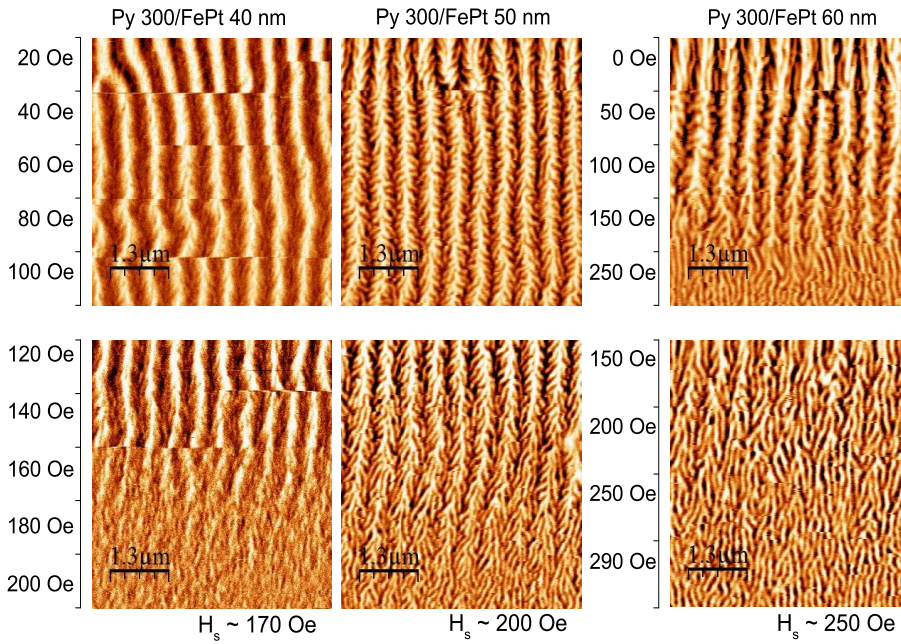


Figura 6.11: Imágenes de MFM con campo aplicado paralelo a la dirección de los *stripes*. Cada 50 líneas de barrido se incrementa el campo aplicado según se indica en la escala del eje y . Para cada bicapa también se agregó el campo de saturación H_s de los *stripes* de Py, estimado de la misma imagen.

Para comprobar el grado de acople magnético en las bicapas, se hicieron medidas en el MFM de algunas de las muestras con campo aplicado paralelo a la dirección de los *stripes*. Para ello, se coloca la muestra a medir en el centro de un electroimán en forma de herradura con núcleo de hierro dulce, el cual cuenta con un bobinado conectado a una fuente de corriente. A través de una calibración previa, utilizando un gaussímetro, es posible saber la relación entre la corriente suministrada y el campo magnético aplicado.

Las mediciones de microscopía con campo externo aplicado que mostramos en la Fig. 6.11 nos permiten explicar el cambio en la forma de las curvas de magnetización tomadas con el VSM y MOKE, especialmente para las bicapas con $d_{\text{FePt}} = 50$ y 60 nm. Como ya establecimos anteriormente, la rotación de los dominios es conjunta y la magnetización se revierte a un mismo H_{coer} . Sin embargo, cada uno de los dos tipos de *stripes* satura a distinto campo (Fig. 6.11), desapareciendo primero la periodicidad asociada al Py para dejar solo la estructura del FePt. En la Fig. 6.12 se muestra el detalle del primer cuadrante de un ciclo de histéresis medido en el VSM y en MOKE, correspondientes a las muestras Py 300/FePt 50 y 60 nm. En la curva medida con el VSM es posible notar una región lineal, que asociamos a la rotación de la estructura de *stripes*. Esta región lineal, desde $H = 0$ hasta $H_{s-\text{Py300/FePt50nm}} \sim 150$ Oe y $H_{s-\text{Py300/FePt60nm}} \sim 180$ Oe la asociamos mayormente a la rotación de los *stripes* de Py dado que la saturación en ambos casos es más cercana a la correspondiente para

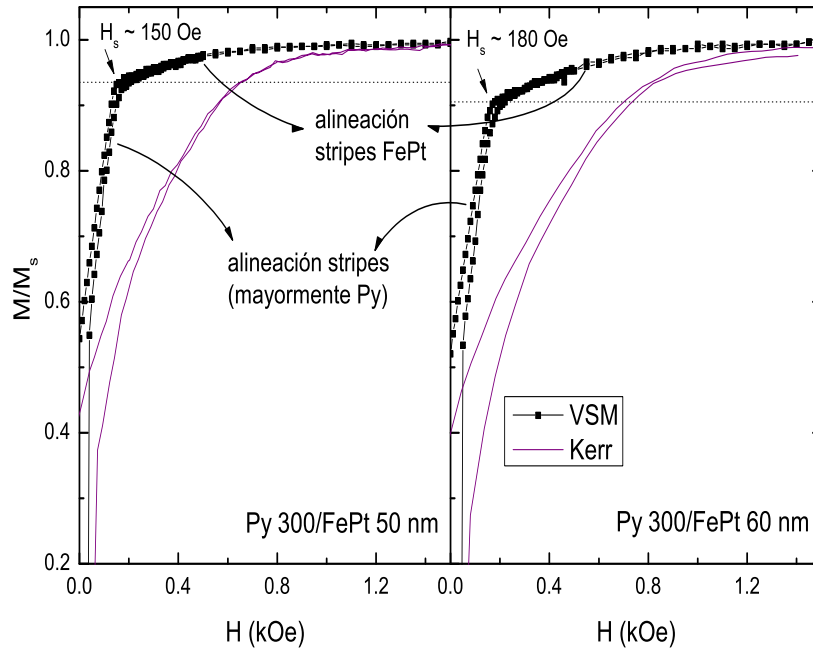


Figura 6.12: Primer cuadrante de las curvas M vs. H para las muestras Py 300/FePt 50 y 60 nm, medidas con VSM y con magnetometría por efecto Kerr.

una película única de Py, $H_{s-\text{Py}300\text{nm}} \sim 130$ Oe, que a la saturación para FePt, $H_{s-\text{FePt}50\text{nm}} \sim 1100$ Oe [18]. Además, en la Fig. 6.11 puede notarse que una vez que desaparece la periodicidad mayor de los *stripes* de Py, aún existe una estructura que puede asociarse a la capa de FePt (ambas regiones diferenciadas en la Fig. 6.12) y la variación de la magnetización resulta principalmente de la alineación de los *stripes* de la capa de FePt. En la Fig. 6.12, también mostramos un detalle del mismo cuadrante del ciclo de histéresis pero medido en un magnetómetro MOKE que también nos muestran una región no lineal que satura a campos notablemente más altos, cercanos a $H_{s-\text{FePt}50\text{nm}}$. Notar que con esta técnica somos sensibles a la magnetización de la capa superior de FePt.

En la bicapa Py 300/FePt 40 nm el espesor de la capa de FePt se encuentra cerca del espesor crítico $d_{\text{cr-FePt}}$, por lo que en la Fig. 6.11 no se distinguen de forma clara dos períodos diferenciados para $H = 0$. De todas formas, para $H \geq 180$ Oe se aprecia una estructura débil de dominios de período más corto que puede asociarse al FePt.

Otra característica notable, que puede verse con mayor claridad en la Fig. 6.10 (b), es que los *stripes* más pequeños asociados al FePt no están alineados paralelos a la dirección de los *stripes* de mayor período. Esto puede explicarse si consideramos además de la interacción de intercambio presente en la interfaz, la interacción dipolar debida al campo disperso generado por la estructura de tiras paralelas en el Py (ver esquema Fig. 6.13). Recordemos que en cada uno de los *stripes* de mayor período del Py la magnetización perpendicular al plano genera un campo disperso con una componente

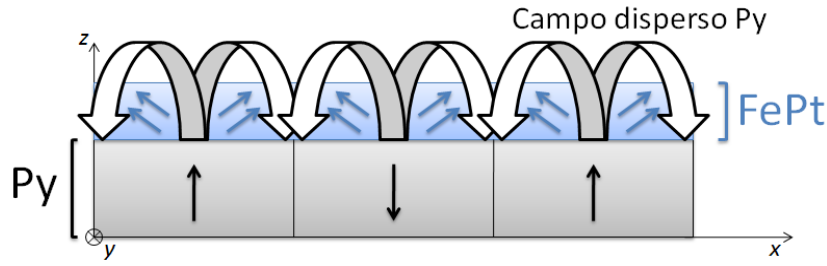


Figura 6.13: Esquema del campo disperso producto de la componente de la magnetización perpendicular de los *stripes* en la capa de Py y el efecto del mismo en la dirección de los *stripes* en la capa de FePt.

en la dirección x (las direcciones se esquematizan en la Fig. 6.13). Este componente del campo generado en el Py se encuentra en el plano de la película y perpendicular a la dirección de los *stripes*. En definitiva, es el que hace que los *stripes* del FePt no estén completamente paralelos a los *stripes* del Py, sino que tienden a alinearse en una dirección intermedia como resultado de la competencia de las dos interacciones.

Es posible estimar de forma aproximada el campo disperso generado por la estructura de *stripes* de una película única de Py. Se han publicado [143] ecuaciones deducidas de forma analítica para la componente del campo disperso H_x (en la dirección contenida en el plano y perpendicular a la dirección de los *stripes*) y H_z , perpendicular al plano de la película (Fig. 6.13). Este es un modelo simplificado para “*strong stripe domains*” ($Q > 1$, ver sección 1.3.2 en la Introducción general), que es un tipo de dominio en el cual se supone una estructura en bandas, cuya magnetización es homogénea y perpendicular al plano de la película, alternando la dirección arriba y abajo en cada tira y con paredes de dominio infinitesimalmente pequeñas. En esta situación es posible deducir las siguientes ecuaciones para las componentes en x y z del campo disperso:

$$\begin{cases} H_x = 2M_{\perp} \ln \left| \frac{\cosh(2\pi z/\lambda_s) - \sin(2\pi x/\lambda_s)}{\cosh(2\pi z/\lambda_s) + \sin(2\pi x/\lambda_s)} \right| \\ H_z = 4M_{\perp} \arctan [\cos(2\pi x/\lambda_s) / \sinh(2\pi z/\lambda_s)] \end{cases} \quad (6.4)$$

En la Fig. 6.14 graficamos las componentes H_x y H_z que se obtienen de las ecuaciones 6.4, normalizando por la magnetización. Estas ecuaciones son válidas para *stripes* en los cuales la magnetización se encuentra totalmente perpendicular al plano, por lo que en nuestro caso no es correcto usar simplemente $M_{s-\text{Py}}$, sino que debemos considerar solo la componente perpendicular, M_{\perp} .

Una cota superior para M_{\perp} está dada por la diferencia entre M_s y M_{rem} , que puede obtenerse de una curva de histéresis. De una medida en el VSM de la muestra de control de Py 313 nm encontramos que, si restamos de forma vectorial,

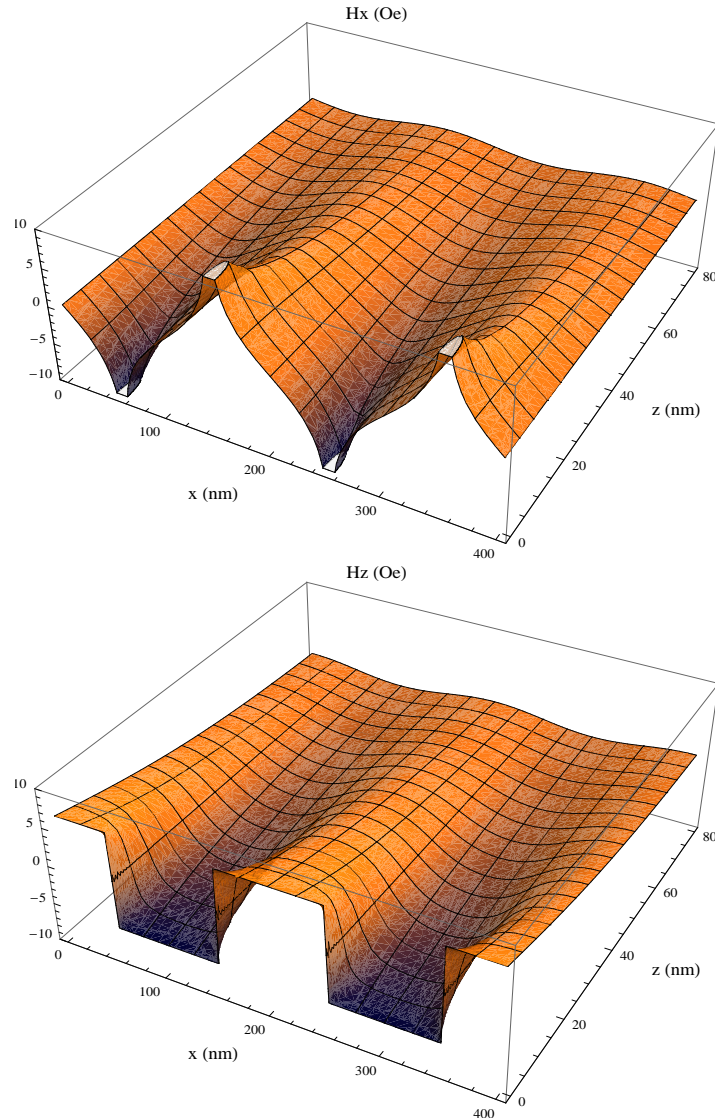


Figura 6.14: Campo magnético disperso en una película de Py en función de las coordenadas espaciales x y z , normalizado por la magnetización. $z = 0$ se corresponde con la superficie de la película de Py y se supone una periodicidad en x de $\lambda_s = 200$ nm.

$M_{\perp} = \sqrt{\left(\frac{M_s - M_{\text{rem}}}{2}\right)^2 + \left(\frac{M_{\text{rem}}}{2}\right)^2} \sim 250 \text{ emu/cm}^3$. Sin embargo, de esta forma no se está tomando en cuenta que, debido a la formación de dominios de clausura, también existe una componente en y de la magnetización remanente dentro del mismo *stripe* (ver modelo III en la sección 1.3.2 de la Introducción general). Además se espera que, al tener un valor de Q relativamente pequeño, esta variación sea apreciable [31]. Por esta razón el valor estimado de M_{\perp} debe considerarse como una cota superior. De la Fig. 6.14 encontramos que, bajo las suposiciones hechas previamente, el valor máximo de la componente en x del campo dipolar (que es la componente que tuerce a los *stripes* de la capa de FePt) varía de $H_x \sim 5000$ Oe en la parte media de un *stripe*, sobre la superficie de la capa de Py hasta $H_x \sim 300$ Oe en $z \sim 60$ nm. Aún si

promediamos la componente de H_x en un semiperíodo en la dirección x , se obtienen valores de $\langle H_x \rangle \sim 1150$ Oe para $z \gtrsim 0$ nm y $\langle H_x \rangle \sim 190$ Oe para $z \sim 60$ nm. Notar que estos valores son del orden del campo de anisotropía rotacional del FePt (ver Fig. 3.8) por lo cual es esperable que los *stripes* de FePt tiendan a alinearse al menos parcialmente en la dirección de H_x .

La interpretación de que la componente de campo disperso H_x producido por la capa de Py es la que rota a los *stripes* de FePt también puede ser corroborada en las imágenes tomadas con campo aplicado de la Fig. 6.11, en las cuales vemos que recién cuando desaparece la periodicidad del Py es que los *stripes* del FePt rotan para tomar la dirección del campo aplicado.

6.4. Conclusiones

Utilizando mediciones de magnetización DC y microscopía de fuerza magnética ha sido posible comprender más acerca de las interacciones presentes en un sistema compuesto por dos materiales en los que se observa una estructura de dominios magnéticos en *stripes*, pero con algunas características diferentes. Se pudo distinguir entre dos regímenes: por un lado cuando la capa superior presenta dominios planares, el período de los *stripes* crece siguiendo una dependencia con la raíz cuadrada del espesor total. A pesar de no haber llegado a un buen acuerdo entre el parámetro α_0 obtenido mediante un ajuste de datos experimentales del tipo $\alpha_0\sqrt{d}$ y lo estimado por el modelo de Murayama en la Ec. 6.2, el tipo de tendencia parece indicar que el aumento en el período se debe a que la interacción de intercambio en la interfaz domina el comportamiento magnético y se refleja en un aumento en el espesor efectivo de las bicapas. Cuando ambos materiales presentan *stripes*, el acople de intercambio sigue presente, pero la estructura de los dominios tanto en la remanencia como cuando están expuestos a un campo externo parece indicar una dinámica más compleja y comienzan a ser importantes los efectos de la interacción dipolar.

Capítulo 7

Conclusiones y perspectivas

El trabajo que desarrollamos en el transcurso del doctorado y que hemos finalmente presentado en esta tesis, tuvo como objetivo general avanzar en la investigación de materiales magnéticos nanoestructurados. En particular, nos hemos enfocado en realizar una caracterización tanto estructural como magnética en películas delgadas de la aleación ferromagnética equiatómica FePt, en su fase químicamente desordenada A1. El trabajo ha sido esencialmente experimental, aunque también hemos utilizado algunos modelos relativamente sencillos para explicar los resultados.

A lo largo de esta tesis hemos resumido en cada capítulo y para cada serie de muestras las conclusiones más importantes, por lo que en esta sección intentaremos unir todos estos resultados y dar una visión global de los avances en el entendimiento de este tipo de sistemas. Cuando comenzamos el trabajo aquí presentado, nuestro grupo ya había realizado estudios acerca del comportamiento de películas de FePt en función del espesor. Partimos entonces nuestra investigación conociendo algunos conceptos fundamentales, tales como la existencia de un espesor crítico por encima del cual el tipo de dominios cambia radicalmente de un arreglo planar a una configuración en forma de *stripes* en $d_{\text{cr}} \sim 30$ nm. También que la aparición los *stripes* es originada por la presencia de una componente de la anisotropía perpendicular al plano de la película que a su vez es originada, en un principio, por las contribuciones de las anisotropías magnetocristalinas y magnetoelásticas. Estas características nos indican que el espesor en el cual ocurre la transición depende del factor de calidad Q , lo que implica que es posible inducir cambios en la configuración magnética variando la anisotropía perpendicular o la magnetización de saturación. Para hacerlo, analizamos la dependencia en temperatura del campo coercitivo (claro indicativo del tipo de dominios presentes en la película) en una serie de muestras donde se varía el espesor de la película. Encontramos un comportamiento anómalo en el rango de espesores $35 \text{ nm} \leq d \leq 56 \text{ nm}$, en el cual el campo coercitivo presenta un máximo a

una dada temperatura T_{sp} . Aunque no realizamos mediciones a altas temperaturas (debido a que se alteran de manera irreversible las propiedades magnéticas), en las películas más delgadas se espera que esta transición ocurra por encima de temperatura ambiente. Todos estos resultados pudieron ser explicados a través de un modelo que toma en consideración las tensiones inducidas térmicamente y la dependencia en temperatura de las constantes involucradas.

También encontramos una fuerte relación entre las interacciones magnéticas y la estructura de dominios a través de mediciones de viscosidad magnética y remanencia, usando protocolos DCD e IRM. Dominios magnéticos en películas con $d < d_{cr}$ se asocian con interacciones magnetizantes, del tipo de intercambio, mientras que dominios en *stripes* presentan interacciones tipo dipolar. La viscosidad magnética también depende fuertemente del tipo de configuración magnética. En películas más delgadas la relajación ocurre en saltos discretos, mientras que para $d > d_{cr}$ encontramos que depende del logaritmo del tiempo siguiendo una relación lineal. Hasta nuestro conocimiento, es la primera vez que se han realizado este tipo de experiencias en películas delgadas de FePt en la fase cristalina A1, o en materiales de características magnéticas similares, en los que ocurra un cambio en la estructura de dominios. Los resultados obtenidos evidencian de forma clara el cambio que acompaña la transición entre dominios magnéticos. Usando experimentos de resonancia ferromagnética en un rango amplio de frecuencias de excitación, fuimos capaces de obtener por primera vez en FePt en la fase A1 un valor para la constante de amortiguamiento α (también llamado parámetro de Gilbert) y la contribución inhomogénea ΔH_0 al ensanchamiento de línea. Encontramos valores de α considerablemente menores a los reportados para el FePt L1₀, probablemente debido a que en las mediciones realizadas por otros autores no pudieron separar las contribuciones intrínsecas y extrínsecas. También encontramos que el valor de α es anisotrópico, presentando un mínimo (máximo) cuando H es perpendicular (paralelo) al plano de la película $\alpha_{\perp} \sim 0.021(1)$ ($\alpha_{\parallel} \sim 0.025(1)$).

Hasta aquí, hemos caracterizado con éxito la transición entre diferentes estructuras de dominios magnéticos. Nuestro objetivo siguiente fue investigar los mecanismos que dominan el cambio en la configuración magnética. Para separar las contribuciones magnetoelástica y magnetocristalina en la anisotropía perpendicular, fabricamos una nueva serie de muestras de igual espesor, $d \sim 100$ nm, en la cual variamos las condiciones de crecimiento (en particular, la presión de argón dentro de la cámara de *sputtering*). Esto nos permitió variar las tensiones en las películas, llegando incluso a cambiar el régimen de tensiones compresivas en las muestras crecidas a bajas presiones de argón, hasta de extensión en las películas con $P_{Ar} \geq 11$ mTorr, mientras mantuvimos aproximadamente constante la textura cristalina. Se realizó entonces una cuidadosa caracterización estructural y magnética, encontrando

que es posible cambiar la estructura magnética para un espesor fijo, variado únicamente la componente magnetoelástica. Este hallazgo nos permitió concluir que la mayor contribución a la anisotropía perpendicular proviene de las tensiones residuales. De esta forma, fuimos capaces de variar de forma controlada la componente magnetoelástica y, a su vez, el factor de calidad Q .

Habiendo establecido la fuerte correlación entre el factor de calidad y las tensiones, pasamos a caracterizar la transición magnética pero para muestras con diferentes Q . Fabricamos series de películas en las cuales no solo variamos las condiciones de fabricación sino también el espesor. Encontramos nuevamente una fuerte dependencia en la configuración magnética con las tensiones residuales y confirmamos que la causa de la desaparición de los *stripes* en la serie anterior (correspondiente al capítulo 4) es debida a la modificación de Q a través de las tensiones. La comparación de los resultados experimentales con los modelos teóricos usados hasta el momento para describir el sistema FePt arrojó resultados más que satisfactorios tanto en la descripción del período de los *stripes* como en la correlación entre d_{cr} y Q . Esto nos permitió realizar un diagrama de fases en el cual dividimos una gráfica Q vs d_{cr} en dos regiones: dominios con la magnetización en el plano y dominios magnéticos en *stripes*.

Finalmente, decidimos profundizar la investigación de las interacciones magnéticas en las propiedades de la estructura de dominios en *stripes* en películas delgadas. Para ello, fabricamos dos series de bicapas en las cuales combinamos materiales (FePt y Py) con un comportamiento magnético similar (un d_{cr} por encima del cual la estructura de dominios cambia) aunque en ambos casos es diferente tanto el espesor crítico ($d_{\text{cr-FePt}} \sim 30$ nm y $d_{\text{cr-Py}} \sim 200$ nm) y el semiperíodo de los *stripes* (50 nm $\lesssim (\lambda/2)_{\text{FePt}} \lesssim 100$ nm y 150 nm $\lesssim (\lambda/2)_{\text{Py}} \lesssim 300$ nm). Esto nos permitió combinar una capa con dominios en *stripes* y una capa superior en la cual se varía el espesor, y por lo tanto la configuración magnética desde dominios planares a *stripes*. Usando técnicas de magnetometría VSM y por efecto Kerr, pudimos en algunos casos separar la respuesta de la magnetización con el campo en la capa superior. También utilizamos medidas de microscopía MFM para caracterizar la evolución del semiperíodo de los *stripes* a medida que cambia el espesor de la capa superior. Todos los resultados discutidos sugieren la existencia de un acople relativamente fuerte en la interfaz, que se hace menos importante a medida que crece el espesor de la capa superior, permitiendo a la magnetización cercana a la superficie una mayor movilidad. Este tipo de dispositivos magnéticos son en la actualidad ampliamente estudiados, dado que combinan las características de un material magnéticamente blando con uno duro. Una mejor comprensión en la dinámica y características de dominios magnéticos en este tipo de sistemas puede tener aplicaciones en futuras generaciones de dispositivos de memoria que utilicen movimiento de paredes de dominio.

Esperamos que este trabajo contribuya al entendimiento del comportamiento en películas delgadas que muestran una transición de dominios magnéticos en los cuales la magnetización se encuentra en el plano a dominios tipo *stripes*. Buscamos, a lo largo de los capítulos, aprender acerca de los mecanismos presentes en ambos regímenes magnéticos (planar y en *stripes*). También usamos distintos modelos fenomenológicos que nos permitieron obtener parámetros de interés, hasta el momento no reportados para películas delgadas de FePt en la fase cristalina desordenada A1. Entre ellos el parámetro α_i que caracteriza el tipo de interacciones dominantes en un sistema magnético, el volumen de activación, el campo de fluctuaciones (todos ellos en función del espesor) y el parámetro de amortiguamiento o de Gilbert α a partir de medidas de resonancia ferromagnética.

Para finalizar queremos mencionar algunos aspectos en los que nos parece muy interesante seguir adelante:

Encontramos que los modelos ajustan de forma satisfactoria el comportamiento que observamos en nuestras muestras, pero la calidad de los valores que obtuvimos podría ser mejorada si se tienen valores fiables de parámetros propios de FePt en la fase desordenada. Sería entonces importante obtener mejores valores para algunas constantes que usamos a lo largo de nuestro trabajo, como los coeficientes de expansión térmica, módulo de Young, coeficiente de Poisson y las constantes de intercambio y magnetostricción.

También sería deseable ahondar en la caracterización estructural de las películas, midiendo la deformación en cada una de las presiones de argón cercanas a la transición magnética y a la transición de tensiones de expansión a compresión. Esto nos permitiría obtener resultados no solamente comparativos y podríamos hacer un análisis cuantitativo de la influencia real de la anisotropía magnetoelástica en la constante de anisotropía perpendicular.

Existe una cantidad de mediciones que no han sido presentadas en este trabajo por diversas razones, ya sea por falta de tiempo para procesar los datos o baja calidad de la medición. En particular, es necesario resaltar mediciones de resonancia ferromagnética en banda W ($f \sim 94$ GHz) que realizamos en el Departamento de Física de la Universidad de Amberes, Bélgica de la serie de películas presentadas en el capítulo 5. Sería interesante contrastar estos resultados con medidas a baja frecuencia y extraer datos del campo de resonancia y ancho de línea en función del espesor para las diferentes series crecidas a distintas presiones de argón. Esto también nos permitiría investigar si algunas de las propiedades de la dinámica de relajación de la magnetización, como por ejemplo el parámetro de amortiguamiento, son dependientes del factor de calidad.

Finalmente, la última serie de películas nos mostró un comportamiento

extremadamente rico y a su vez complejo, aún no completamente comprendido. Un estudio utilizando resonancia ferromagnética sería muy útil para dilucidar el tipo de interacción presente y el alcance de la misma.

Apéndice A

Caracterización del blanco de FePt

A continuación comentaremos brevemente algunas experiencias de caracterización que se realizaron sobre el blanco de FePt con el cual fabricamos todas las películas que utilizamos en este trabajo. Recordemos que la composición nominal del blanco es equiatómica, aunque estudios EDS revelaron una composición atómica 45/55, es decir, más rica en Pt. Para hacer las medidas, cortamos algunas láminas de la parte posterior del mismo blanco y, a través de mediciones de difracción de rayos-X y de magnetometría VSM hallamos que se encuentran, al menos parcialmente, en la fase cristalográfica ordenada $L1_0$. A continuación, se describen las experiencias de lámina vibrante (LV) en consecutivos ciclados en temperatura para una muestra recocida y otra sin tratamiento térmico. Este tipo de experimentos nos permiten obtener información sobre mecanismos de movilidad de defectos (puntuales, dislocaciones, bordes de grano, etc.) a diferentes temperaturas. Finalmente, extrajimos de estas mediciones un valor para el módulo de Young E a temperatura ambiente que utilizamos a lo largo de la tesis para la estimación de la anisotropía por efectos magnetoelásticos.

A.1. Determinación de la fase cristalográfica por difracción de rayos X

Para estos experimentos cortamos muestras del blanco de FePt utilizado para la fabricación por *sputtering* DC de las películas investigadas en esta tesis. Se cortaron dos láminas de aproximadamente $10 \times 3 \times 0.5$ mm. La lámina estudiada por difracción de rayos-X se adhirió sobre un sustrato de Si, similar al utilizado para fabricar las películas.

Previamente a la adquisición del difractograma de la Fig. A.1 se realizó un hamacado alrededor del pico del sustrato de Si (400), por ser este el más intenso y angosto. Todos los picos de difracción pudieron ser indexados asumiendo que la muestra se encuentra (al menos parcialmente) en la fase cristalina tetragonal

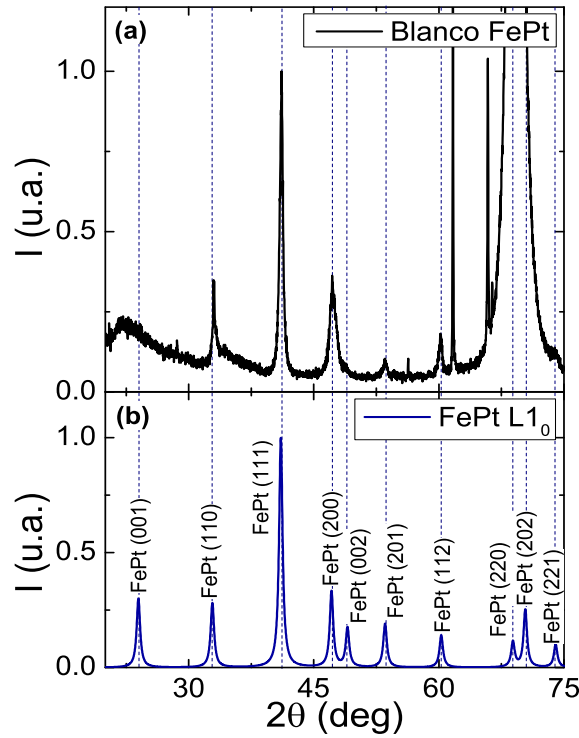


Figura A.1: (a) Difractograma de rayos X obtenido del blanco de FePt a temperatura ambiente. (b) Difractograma calculado para una muestra de FePt completamente ordenada en la fase tetragonal $L1_0$, con granos distribuidos al azar. Las líneas verticales sirven de guía para comparar la posición de las reflexiones teóricas con las medidas.

ordenada ($L1_0$). De esta medida pueden obtenerse valores aproximados para los parámetros de red: $a \sim 0.385$ nm y $c \sim 0.371$ nm. Estos valores son completamente consistentes con los valores usualmente aceptados.

En particular, en la Ref. [13] se reportan valores para los parámetros de red de la fase ordenada en un rango $0.3848(4) \text{ nm} \leq a \leq 0.3852(5) \text{ nm}$ y $0.3715(4) \text{ nm} \leq c \leq 0.3728(5) \text{ nm}$ para películas delgadas de FePt con un espesor $d \sim 50$ nm, fabricadas por métodos de *sputtering* a temperatura ambiente y luego recocidos para llegar a la fase ordenada. La variación en los parámetros de red está dada por el tiempo y la temperatura del recocido, que varía en el rango $300^\circ\text{C} \leq T \leq 700^\circ\text{C}$. Como desconocemos el método de fabricación del blanco, no es posible hacer una comparación más rigurosa. A partir de la relación de intensidades entre los picos de reflexión, estimamos un grado de ordenamiento atómico a través del parámetro de orden [13] $S = \frac{(I_{111}/I_{110})}{(I_{111}/I_{110})_{L1_0}} \sim 0.93$ (donde $S = 1$ implica ordenamiento total), pero hay que considerar que los granos cristalinos de la muestra utilizada no necesariamente están al azar y no hemos tenido en cuenta el efecto de una posible textura.

A.2. Determinación del módulo elástico y experimentos de lámina vibrante

La motivación primera de este trabajo fue obtener un buen valor del módulo de Young a temperatura ambiente para FePt en la fase desordenada, pero después de realizar las mediciones de difracción pudimos comprobar que la muestra en *bulk* disponible se encuentra parcialmente en la fase ordenada. Por esta razón intentamos llegar a la fase desordenada por medio de un recocido a 800° C por espacio de una hora en atmósfera inerte de Ar para evitar la oxidación y un templeado posterior en agua. Lamentablemente nuevas medidas magnéticas comprobaron que la muestra no llegó a la fase A1. De todas formas, se hicieron mediciones en ambas muestras para ver los posibles efectos estructurales del templeado.

Si consideramos un sólido elástico ideal, la ley de Hooke define la relación entre la tensión σ y la deformación ε como:

$$\begin{aligned}\sigma &= E\varepsilon \\ \varepsilon &= J\sigma\end{aligned}, \tag{A.1}$$

donde E se define como el módulo elástico y J es conocida como compliancia. En el caso de un sólido elástico ideal $E = 1/J$. Existen tres condiciones que definen un comportamiento elástico ideal:

1. La deformación respuesta a una dada tensión tiene un único valor de equilibrio.
2. La deformación (respuesta a la tensión) es instantánea.
3. La respuesta es lineal con la tensión externa aplicada.

Si proponemos un modelo en el cual solo se elimina la condición de instantaneidad, tendremos un comportamiento conocido como anelástico. En general, en este tipo de sistemas el módulo elástico (así como la compliancia) serán complejos. El comportamiento de un sólido bajo una fuerza periódica estará dado por esta función respuesta compleja, donde la parte real describe la energía almacenada por el sólido y la parte imaginaria describe la energía disipada. El ángulo de desfase φ entre la tensión aplicada y la deformación producida nos da una medida de la fracción de energía perdida por ciclo debido al comportamiento anelástico, por lo que se define a φ (o $\tan \varphi$) como la fricción interna (FI) del material. A menudo se utiliza el factor de calidad mecánico Q_m del sistema, cuyo recíproco $Q_m^{-1} = \tan \varphi$ es la fricción interna.

La característica más importante de la fricción interna es que está relacionada directamente con la microestructura en el interior del material y con el tipo específico

de movimiento generado, por ejemplo, migración o reordenamiento de defectos. Estos últimos pueden ser:

1. Defectos puntuales: vacancias, átomos sustitucionales o intersticiales.
2. Defectos lineales: dislocaciones.
3. Defectos volumétricos: bordes de grano en sólidos policristalinos.

Para el experimento de la lámina vibrante (LV) es necesario hacer una calibración, tanto del módulo elástico como de la fricción interna. En el caso de E , es necesario tomar cuidadosamente las dimensiones de la lámina, ya que el equipo mide la frecuencia de resonancia de la barra y el módulo elástico es proporcional al cuadrado de esta. La constante de proporcionalidad está íntimamente ligada al momento de inercia de la barra.

Para el caso de una lámina vibrante, de masa m_s , en el primer modo de oscilación con una carga en el extremo (imán) de masa m_1 y suponiendo que $m_s \gg m_1$, tenemos la siguiente expresión [144]:

$$E \simeq \frac{\rho (12.96 m_1/m_s)}{(3.561 \chi_{rg}/l_{barra}^2)} f_{LV}^2 = \Gamma f_{LV}^2 \quad (\text{A.2})$$

donde χ_{rg} es el radio de giro de una sección transversal al eje de doblado, l_{barra} el largo de la lámina, ρ la densidad del material y Γ la constante de proporcionalidad entre el módulo de elasticidad y la frecuencia de resonancia, f_{LV} , al cuadrado. Para el caso del FePt se tomó $\rho \sim 14.1 \text{ gr/cm}^3$.

Se realizaron medidas en el equipo de LV del módulo elástico y de la fricción interna para una muestra en el estado original y otra recocida. Como primer paso se realiza un barrido en frecuencia para encontrar la resonancia, generalmente a temperatura ambiente. Una vez encontrada, se hacen barridos en temperatura mientras el programa mide la frecuencia de excitación necesaria para asegurarse estar siempre en la condición de resonancia (proporcional al módulo elástico) y el desfase entre la señal aplicada y la respuesta del material (fricción interna, FI). Los ciclados en temperatura se hicieron de 100 a 490 K, con una velocidad de barrido de 1 K/min. En las Figs. A.2 y A.3 se muestran algunas de las mediciones obtenidas para los ciclados consecutivos en temperatura para la muestra recocida y en el estado original, respectivamente.

Es interesante notar que en el caso de la muestra recocida se puede ver en el primer calentamiento un escalón en el módulo elástico que luego desaparece gradualmente con los siguientes ciclados térmicos. Este efecto no se observa en la muestra en estado original (Fig. A.3), en la cual desde el primer ciclado encontramos que el módulo de elasticidad decrece de forma lineal con la temperatura.

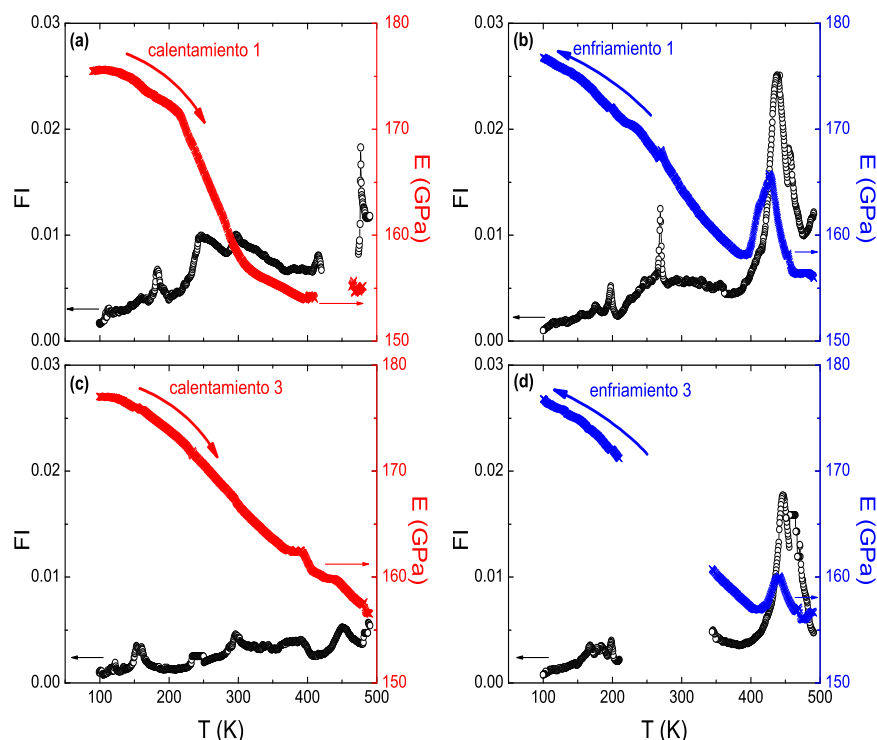


Figura A.2: Barridos en temperatura de la muestra FePt con tratamiento térmico (recocido) en el experimento de LV. Se realizaron varios ciclados, midiendo el calentamiento y el enfriamiento de forma consecutiva. Se muestran solo dos ciclados completos, (a) y (c) calentamientos y (b) y (d) enfriamientos. Los círculos vacíos representan la fricción interna FI y las cruces el módulo elástico. Los espacios en blanco son debidos a fallas en el sistema de medición.

También llama la atención un pico que aparece tanto en la fricción interna a 445 K, como en el módulo elástico a los 435 K de temperatura, pero solo en los enfriamientos. Lamentablemente, problemas de medición no permitieron tener la medida del segundo ciclo, pero podría conjeturarse que su intensidad disminuye con los sucesivos enfriamientos. Este pico, por su forma y temperatura podría asociarse a sistemas de dislocaciones [144, 145] y la histéresis térmica que presenta es influenciada por las sucesivas rampas de temperatura y la limitada movilidad de los átomos.

Del primer ciclado para la muestra con tratamiento térmico (Fig. A.2) podemos extraer un valor para el módulo elástico $E_{\text{FePt-recocido}} \sim (165 \pm 10)$ GPa, valor notablemente menor que para la muestra en el estado original, donde obtuvimos $E_{\text{FePt-original}} \sim (215 \pm 10)$ GPa. Recordemos que ambas muestras se encuentran parcialmente en la fase cristalina ordenada $L1_0$, aunque después del tratamiento térmico se produjo una transición parcial a la fase desordenada, consistente con la reducción hallada en el módulo de Young [105].

En resumen, gracias a mediciones de difracción de rayos-X, encontramos que el

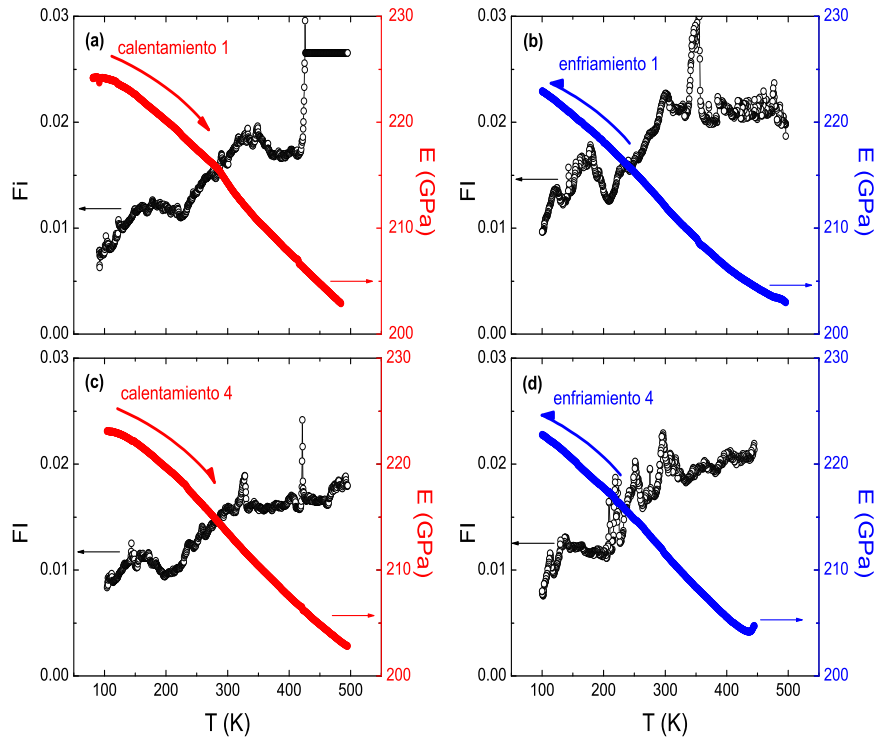


Figura A.3: Barridos en temperatura de la muestra FePt sin tratamiento térmico en el experimento de LV. Se muestran solo dos ciclados completos, (a) y (c) calentamientos y (b) y (d) enfriamientos. Los círculos vacíos representan la fricción interna FI y las cruces el módulo elástico.

blanco se encuentra en la fase químicamente ordenada $L1_0$. Del experimento de LV se observa poca repetitividad en las medidas de fricción interna, mostrando que existen procesos irreversibles cuando el material es sometido a tratamientos térmicos hasta 500 K. Finalmente, encontramos un valor para el módulo de Young a temperatura ambiente de $E \sim 165(10)$ GPa para un compuesto parcialmente ordenado en la fase cristalina $L1_0$.

Bibliografía

- [1] S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, Y. Shimada, K. Fukamichi, Phys. Rev. B 66, 024413 (2002). [1](#), [11](#), [95](#), [103](#), [116](#)
- [2] W. Tangwatanakul, K. Chokprasombat, C. Sirisathitkul, P. Jantaratana, Y. Sirisathitkul, J. of Alloys Comp. 654, 234-239 (2016). [1](#)
- [3] O. Crisan, A.D. Crisan, I. Mercioniu, R. Nicula, F. Vasiliu, J. Magn. Magn. Mat. 401, 711-715 (2016).
- [4] M. N. Ashiq, R. B. Qureshi, M. A. Malana, M. F. Ehsan, J. of Alloys Comp. 617, 437-443 (2014).
- [5] C. A. Ross, Annu. Rev. Mater. Res. 31, 203-35 (2001). [1](#)
- [6] Lei Ma, Z. W. Liu, H. Y. Yu, X. C. Zhong, Y. P. Zeng, D. C. Zeng, X. P. Zhong; IEEE Trans. Magn. 47, 10 (2011). [1](#)
- [7] J. U. Thiele, K. R. Coffey, M. F. Toney, J. A. Hedstrom, A. J. Kellock, J. Appl. Phys. 91, 6595 (2002). [2](#)
- [8] K. Barmak, J. Kim, L. H. Lewis, K. R. Coffey, M. F. Toney, A. J. Kellock, J.-U. Thiele, J. Appl. Phys. 95, 7501 (2004). [2](#), [3](#), [5](#), [6](#)
- [9] R. A. Ristau, K. Barmak, L. H. Lewis, K. R. Coffey, J. K. Howard, J. Appl. Phys. 86, 4527 (1999). [2](#)
- [10] R. F. C. Farrow, D. Weller, R. F. Marks, M. F. Toney, S. Hom, G. R. Harp, A. Cebollada, Appl. Phys. Lett. 69, 1166 (1996). [2](#)
- [11] T. B. Massalski (editor), H. Okamoto, P. R. Subramanian, L. Kacprzak, Binary Alloy Phase Diagrams, 2nd ed., ASM International, Materials Park, Ohio, p. 1752 (1990). [2](#)
- [12] P. Fredriksson, B. Sundman, A thermodynamic assessment of the Fe-Pt system, Calphad 25 (4), 535-548 (2001). [3](#)

- [13] F. E. Spada, F. T. Parker, C. L. Platt, J. K. Howard, J. Appl. Phys 94, 5123 (2003). [3](#), [5](#), [6](#), [13](#), [49](#), [50](#), [91](#), [98](#), [150](#)
- [14] L. M. Magat, G. V. Ivanova, L. V. Solina, N. N. Shegoleva, Ya. S. Shur, Fiz. Metall. Metalloved. 29, 400-403 (1970). [3](#)
- [15] A. Menshikov, T. Tarnóczy, E. Krén, Phys. Stat. Sol. A 28, K85-K87 (1975). [3](#)
- [16] G. E. Bacon, J. Crangle, Chemical and magnetic order in platinum-rich Pt+Fe alloys, Proc. Royal Soc. London A 272, 387-405 (1963). [4](#)
- [17] Berry, D.C., Barmak, K., J. Appl. Phys. 102, 2 024912 (2007). [4](#), [5](#), [6](#), [95](#)
- [18] E. Sallica Leva, R. C. Valente, F. Martínez Tabares, M. Vasquez Mansilla, S. Roshdestwensky, A. Butera, Phys. Rev. B 82, 144410 (2010). [4](#), [5](#), [6](#), [7](#), [14](#), [15](#), [41](#), [42](#), [51](#), [57](#), [61](#), [70](#), [74](#), [94](#), [95](#), [99](#), [109](#), [114](#), [115](#), [116](#), [135](#), [136](#), [137](#), [139](#)
- [19] J. M. Guzmán, N. Álvarez, H. R. Salva, M. Vásquez Mansilla, J. Gómez, A. Butera, J. Magn. Magn. Mat. 347, 61 (2013). [4](#), [20](#), [98](#), [109](#)
- [20] M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela, J. P. Bucher, Phys. Rev. B 54, 3428 (1996). [4](#), [14](#), [15](#), [17](#), [117](#), [135](#)
- [21] V. Gehanno, Y. Samson, A. Marty, B. Gilles, A. Chamberod. J. Magn. Magn. Mat. 172, 26 (1997). [4](#), [14](#), [17](#)
- [22] A. Asenjo, J. M. García, D. García, A. Hernando, M. Vázquez, P. A. Caro, D. Ravelosona, A. Cebollada, A. Briones, J. Magn. Magn. Mat. 196, 23 (1999). [4](#), [14](#)
- [23] R. Brucas, H. Hafermann, M. I. Katsnelson, I. L. Soroka, O. Eriksson, B. Hjörvarsson, Phys. Rev. B 69, 064411 (2004). [4](#), [14](#)
- [24] C.A. Ramos, E. Vassallo Brigneti, J. Gómez, A. Butera, Physica B 404, 2784 (2009). [4](#), [14](#), [17](#)
- [25] E. Burgos, E. Sallica Leva, J. Gómez, F. Martínez Tabares, M. Vásquez Mansilla, A. Butera, Phys. Rev. B 83, 174417 (2011). [5](#), [41](#), [109](#)
- [26] S. N. Hsiao, F. T. Yuan, H. W. Chang, H. W. Huang, S. K. Chen, H. Y. Lee, Appl. Phys. Lett. 94, 232505 (2009). [50](#), [91](#), [92](#), [98](#), [105](#), [109](#)
- [27] N. H. Luong, V. V. Hiep, D. M. Hong, N. Chau, N. D. Linh, M. Kurisu, D.T.K. Anh, G. Nakamoto, J. Magn. Magn. Mat. 290-291, 559-561 (2005). [5](#)
- [28] M. Getzlaff, Fundamentals of Magnetism, New York: Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2008). [5](#), [9](#), [10](#), [13](#), [15](#)

- [29] J.M.D Coey, Magnetism and magnetic materials, 2nd ed. New York: Cambridge University Press (2010). [26](#), [27](#), [38](#)
- [30] B. D. Cullity, C. D. Graham; Introduction to Magnetic Materials 2nd Ed. (2009). [8](#), [9](#), [10](#), [13](#), [19](#), [47](#), [68](#), [98](#), [129](#)
- [31] A. Hubert, R. Schäfer, Magnetic Domains, 3rd ed. Springer, New York (2009). [15](#), [17](#), [115](#), [141](#)
- [32] M.W. Muller: Distribution of the magnetization in a ferromagnet. Phys. Rev.122, 1485-1489 (1961). [16](#)
- [33] V. Gehanno, R. Hoffmann, Y. Samson, A. Marty, S. Auffret, Eur. Phys. J. B 10, 457-464 (1999). [5](#), [15](#), [17](#), [19](#), [47](#)
- [34] E. Sallica Leva, Estudio del espesor crítico para la formación de dominios magnéticos tipo stripe en películas delgadas de FePt (Tesis de maestría). Universidad nacional Mayor de san Marcos, Lima Perú (2011). [5](#), [7](#), [42](#), [64](#)
- [35] J. V. Lyubina, Nanocrystalline Fe-Pt alloys: phase transformations, structure and magnetism (Tesis de doctorado), Facultad de Matemáticas y Ciencias Naturales - Universidad Técnica de Dresde, Alemania. (2006). [6](#)
- [36] L. Vegard, Zeitschrift fur Physik 5, 17-26 (1921). [6](#)
- [37] Cullity, B. D., Elements of X-Ray Diffraction, 3rd edition, Addison-Wesley Publishing Co., Reading, MA (1998). [6](#), [27](#)
- [38] Th. de Keijser, E. J. Mittemeijer, H. C. F. Rozendaal, J. Appl. Cryst. 16, 309 (1983). [6](#), [85](#)
- [39] J. Kaczér, M. Zelený, P. Suda: Czech. J. Phys. 13, 579 (1963). [17](#), [18](#)
- [40] S. Blundell, Magnetism in Condensed Matter, Oxford: Oxford University Press (2001). [8](#)
- [41] H. Shima, K. Oikawa, A. Fujita, K. Fukamichi, K. Ishida, J. Magn. Magn. Mat. 272-276 2173 (2004). [11](#), [13](#), [49](#), [98](#)
- [42] R. A. McCurrie, P. Gaunt, Philosophical Magazine 13 , 567-577 (1966). [11](#)
- [43] T. Suzuki, K. Harada, N. Honda, K. Ouchi, J. Magn. Magn. Mat. 193, 85-88 (1999). [14](#)
- [44] Y. Murayama, J. Phys. Soc. Jap. 21, 2253 (1966). [15](#), [17](#), [18](#), [20](#), [47](#), [48](#), [94](#), [95](#), [103](#), [104](#), [115](#), [117](#), [134](#)

- [45] A. L. Sukstanskii, K. I. Primak, J. Magn. Magn. Mat. 169, 31 (1997). [15](#), [19](#), [20](#), [47](#), [104](#), [115](#), [117](#)
- [46] R. J. Spain, Appl. Phys. Lett. 3, 11 (1963). [16](#)
- [47] N. Saito, H. Fujiwara y Y. Sugita; J. Phys. Soc. Japan 19 421, 1116 (1964). [17](#), [18](#)
- [48] N. Saito: Thesis, Tokyo Univ. (1966). [17](#)
- [49] C. V. Thompson, R. Carel, Stress and grain growth in thin films, J. Mech. Phys. Solids 44 (5), 657-673 (1996). [20](#), [21](#), [105](#)
- [50] S. Tamulevicius, Stress and strain in the vacuum deposited thin films, Vacuum 51 (2), 127-139 (1998). [21](#), [22](#), [49](#), [105](#)
- [51] C.V. Thompson, R. Carel, J. Mech. Phys. Solids, 44, 657 (1996). [22](#), [49](#)
- [52] M. Ohring; Materials Science of thin films 2nd Ed. (1991). [22](#), [26](#)
- [53] Azaroff, L. F., Elements of X-Ray Crystallography, McGraw-Hill Book Company, New York (1968). [27](#)
- [54] O. Anderoglu, Residual stress measurement using X-Ray diffraction, Master of Sciences Thesis, Texas A&M University (2004). [29](#), [89](#), [90](#)
- [55] L. G. Schulz, J. Appl. Phys. 20, 1030 (1949). [30](#), [87](#)
- [56] J. Torres, P. Angarita, B. Cruz, Revista Colombiana de Física 43, 3 (2011). [34](#), [36](#)
- [57] C. Richard Brundle, Charles A. Evans, Jr. Shaun Wilson; Encyclopedia of materials characterization, Manning Publications Co. (1992). [35](#)
- [58] U. Hartmann, Magnetic Force Microscope, Annu. Rev. Mater. Sci. 29, 53-87 (1999). [37](#)
- [59] M. T. Causa, Capítulo 5: Resonancia paramagnética electrónica, no publicado. [39](#)
- [60] S. Okamoto, O. Kitakami, N. Kikuchi, T. Miyazaki, Y. Shimada, Y. K. Takahashi. Phys. Rev. B 67, 094422 (2003). [46](#)
- [61] T. Bublat, D. Goll, J. Appl. Phys. 108, 113910 (2010). [46](#)
- [62] P. Sharma, N. Kaushik, A. Makino, A. Inoue, IEEE Trans. Magn. 47, 4394 (2011). [46](#), [47](#)

-
- [63] P. Gaunt, *Philos. Mag. B* 48, 261 (1983). [47](#)
- [64] X. Guo, X. Chen, Z. Altounian, J. O. Ström-Olsen, *J. Appl. Phys.* 73, 6275 (1993). [47](#)
- [65] T. W. Kim, R. J. Gambino, *J. Appl. Phys.* 81, 5184 (1997). [47](#)
- [66] J.A. Aboaf, T.R. McGuire, S.R. Herd, E. Klokholm, *IEEE Trans. Magn.* 20, 1642 (1984). [49](#), [98](#), [115](#)
- [67] W. Wunderlich, K. Takahashi, D. Kubo, Y. Matsumara, Y. Nishi, *J. Alloys Comp.*, 475 339 (2009). [49](#), [98](#)
- [68] J.E. Schmidt, L. Berger, *J. Appl. Phys.* 55, 1073 (1984). [49](#)
- [69] D. Sander, *Reports on Progress in Physics* 62, 809 (1999). [49](#)
- [70] P. Rasmussen, X. Rui, J. E. Shield, *Appl. Phys. Lett.* 86, 191915 (2005). [50](#), [91](#), [92](#), [98](#)
- [71] G. B. Mitra, T. Chattopadhyay, *Acta Cryst. A* 28, 179 (1972). [50](#)
- [72] H. Masumoto, T. Kobayashi, *Trans. Japan Institute of Metals* 6, 113 (1965). [50](#), [92](#)
- [73] T. Ichitsubo, K. Tanaka, *J. Appl. Phys.* 96, 6200 (2004). [50](#), [92](#)
- [74] G. W. D. Spratt, P. R. Bissell, R. W. Chantrell, E. P. Wohlfarth, *J. Magn. Magn. Mater.* 75, 309 (1988). [51](#)
- [75] P. E. Kelly, K. O'Grady, P. I. Mayo, R. W. Chantrell, *IEEE Trans. Magn.* 25, 3881 (1989). [51](#)
- [76] J. García Otero, M. Porto, J. Rivas, *J. Appl. Phys.* 87, 7376 (2000). [51](#)
- [77] E. P. Wohlfarth, *J. Phys. F* 14, L155 (1984). [51](#)
- [78] E. P. Wohlfarth, *J. Appl. Phys.* 29, 595 (1958). [51](#), [52](#)
- [79] X.-D. Che, H. N. Bertram, *J. Magn. Magn. Mater.* 116, 121 (1992). [52](#), [60](#)
- [80] J. W. Harrell, D. Richards, M. R. Parker, *J. Appl. Phys.* 73, 6722 (1993). [52](#), [60](#)
- [81] R. Street, J. C. Wooley, *Proc. Phys. Soc. London, Sec. A* 62, 562 (1949). [52](#)
- [82] P. Gaunt, *J. Appl. Phys.* 59, 4129 (1986). [53](#), [64](#), [65](#)
- [83] D. H. L. Ng, C. C. H. Lo, P. Gaunt, *IEEE Trans. Magn.* 30, 4854 (1994). [53](#)

- [84] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*, Krieger Publishing, Florida (1964). [61](#)
- [85] G. J. Tomka, P. R. Bissell, K. O'Grady, R. W. Chantrell, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 27, 1601 (1994). [62](#)
- [86] P. Gaunt, G. J. Roy, *Philos. Mag.* 34, 781 (1976). [63](#), [64](#), [65](#), [67](#)
- [87] S. J. Collocott, V. Neu, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 45, 035002 (2012). [66](#)
- [88] J. Smit, H. G. Beljers, *Philips Res. Rep.* 10, 113 (1955). [68](#), [100](#)
- [89] Vittoria C, *Microwave Properties of Magnetic Films*, Singapore: World Scientific p. 87 (1993). [68](#)
- [90] R. D. McMichael, D. J. Twisselmann, A. Kunz, *Phys. Rev. Lett.* 90, 227601 (2003). [68](#)
- [91] Butera A., *Eur. Phys. J. B* 52, 297-303 (2006). [68](#), [72](#)
- [92] Zakeri Kh et al., *Phys. Rev. B* 76, 104416 (2007). [68](#)
- [93] Vittoria C, Yoon S D, Widom A, *Phys Rev. B* 81, 014412 (2010). [68](#), [73](#)
- [94] Safonov V L, *J. Appl. Phys.* 91, 8653-5 (2002).
- [95] Meckenstock R, Spoddig D, Frait Z, Kambersky V, Pelzl J, *J. Magn. Magn. Mater.* 272-276 1203-4 (2004). [68](#), [73](#)
- [96] D. M. Jacobi, E. Sallica Leva, N. Álvarez, M. Vásquez Mansilla, J. Gómez, A. Butera, *J. Appl. Phys.* 111, 033911 (2012). [70](#), [100](#), [109](#)
- [97] N. Álvarez, G. Alejandro, J. Gómez, E. Goovaerts y A. Butera; *J. Phys. D: Appl. Phys.* 46, 505001 (2013). [72](#)
- [98] Mizukami S, Iihama S, Inami N, Hiratsuka T, Kim G, Naganuma, H, Oogane M y Ando Y, *Appl. Phys. Lett.* 98, 052501 (2011). [72](#)
- [99] Chen Z, Yi M, Chen M, Li S, Zhou S y Lai T, *Appl. Phys. Lett.* 101, 222402 (2012). [72](#)
- [100] Alvarez-Prado L M, Pérez G T, Morales R, Salas F H y Alameda J M, *Phys. Rev. B* 56, 3306-16 (1997). [74](#)
- [101] C. Logofatu, C. C. Negrila, R. V. Ghita, F. Ungureanu, C. Cotirlan, C. Ghica, A. Stefan Manea y M. F. Lazarescu; "Study of SiO₂/Si Interface by Surface Techniques", National Institute of Materials Physics, Bucharest Romania. [79](#)

- [102] N. Nakamura, A. Uranishi, M. Wakita, H. Ogi, M. Hirao, M. Nishiyama, Appl. Phys. Lett. 98, 101911 (2011). [83](#)
- [103] M. Imaizumi, C. A. Soufen, C. A. F. Pintao, L. C. Varanda, M. Jafelicci Jr., Materials Science and Engineering A, vol. 167, 521-522 (2009). [83](#)
- [104] N. Zotov, A. Ludwig, Intermetallics 16, 113 (2008). [83](#)
- [105] T. Ichitsubo, K. Tanaka, J. Appl. Phys. 96, 6220 (2004). [83](#), [153](#)
- [106] A. Al-Ghaferi, P. Mullner, H. Heinrich, G. Kostorz, J. M. K. Wiezorek, Acta Materiala, 54, 881 (2006). [83](#)
- [107] G. K. Williamson, W. H. Hall, Acta Metall. 1, 22 (1953). [86](#)
- [108] D. Chateigner, P. Germi, M. Pernet; Texture Analysis by the Schulz Reflection Method: Defocalization Corrections for Thin Films; J. Appl. Cryst. 25, 766-769 (1992). [87](#)
- [109] F. Bachmann, R. Hielscher, H. Schaeben, Solid State Phenomena 160, 63-68 (2010). [87](#)
- [110] B. M. Clemens, J. A. Bain, Stress Determination in Textured Thin Films Using X-Ray Diffraction, MRS Bulletin 17, 07 46-51 (1992). [89](#), [92](#)
- [111] P. J. Withers: Key Eng. Mater.: Ceram. Matrix Compos. 108-110, 291- 314 (1995). [89](#)
- [112] Slaughter W., The Linearized Theory of Elasticity, Boston: Birkhauser (2002). [91](#)
- [113] H. Xu, W. Zhang, B. Peng, W. Zhang, Appl. Surface Science 257 (7), 2689-2693 (2011). [93](#)
- [114] Mukesh Kumar, S. Mishra, R. Mitra, Surface and Coatings Technology 228, 100-114 (2013).
- [115] H. C. Lee, G. H. Kim, S. K. Hong, K. Y. Lee, Y. J. Yong, C. H. Chun, J. Y. Lee, Thin Solid Films 261, 148-153 (1995). [93](#)
- [116] Th. Speliotis, G. Varvaro, A. M. Testa, G. Giannopoulos, E. Agostinelli, W. Li, G. Hadjipanayis, D. Niarchos, Appl. Surface Science 337, 118-124, (2015). [93](#)
- [117] Mannan Ali; Growth And Study Of Magnetostrictive FeSiBC Thin Films For Device Applications; Doctor of Philosophy thesis; Department of Physics & Astronomy, University of Sheffield (1999). [93](#)

- [118] H.J. Leamy, A.G. Dirks, J. Appl. Phys. 50 (4), 2871 (1979). [94](#)
- [119] H. Kanazawa, G. Lauhoff, T. Suzuki, J. Appl. Phys. 87, 6143 (2000). [96](#), [109](#)
- [120] I. Horcas, R. Fernández, J. M. Gómez-Rodríguez, J. Colchero, J. Gómez-Herrero, A. M. Baro, “WSXM: A software for scanning probe microscopy and a tool for nanotechnology”; Review of Scientific Instruments 78, 013705 (2007). [97](#), [115](#), [134](#)
- [121] M. P. Ruffoni, C.B. Ndao, S. Pascarelli, N.M. Dempsey, Direct measurement of the local, atomic-scale, Joule magnetostriction of FePt. Joint Eur. Magn. Symposia, Dublin (2008). Unpublished. [98](#)
- [122] I. J.A.C. Bland, B. Heinrich (Eds.), Ultrathin Magnetic Structures, Springer-Verlag, Berlin, p. 75 (2005). [98](#)
- [123] T. Yamaguchi, R. Miyagawa, Jpn. J. Appl. Phys. 30, 2069 (1991). [107](#)
- [124] C. Kooy, V. Enz, Philips Res. Rep. 15, 7 (1960). [117](#), [134](#), [135](#)
- [125] M. Romera, R. Ranchal, M. Maicas, C. Aroca, J. Appl. Phys. 110 (8), 083910 (2011). [122](#)
- [126] H.D. Arnold, G.W. Elmen; J. of the Franklin Institute 195 (5), 621-632 (1923). [122](#)
- [127] Y. Sugita, H. Fujiwara, T. Sato; Appl. Phys. Lett. 10, 229 (1967).
- [128] Wee Tee Soh, Nguyen N. Phuoc, C. Y. Tan, C. K. Ong; J. Appl. Phys. 114, 053908 (2013). [122](#), [125](#), [136](#)
- [129] F. Seitz, The Modern Theory of Solids, McGraw-Hill, New York, p. 487 (1940). [123](#)
- [130] R. Tayade; Theoretical and experimental contribution to the study of exchange-spring magnets; Doctor of Materials Sciences; Ecole normale superieure de Cachan - ENS Cachan (2014). [124](#)
- [131] N. Amos, R. Fernandez, R. Ikkawi, B. Lee, A. Lavrenov, A. Krichevsky, D. Litvinov, S. Khizroev, J. Appl. Phys. 103, 07E732 (2008). [125](#), [136](#)
- [132] G. Wang, C. Dong, W. Wang, Z. Wang, G. Chai, C. Jiang, D. Xue; J. Appl. Phys. 112, 093907 (2012). [125](#)
- [133] K. Utsumiya, T. Seki, K. Takanashi; J. Appl. Phys. 110, 103911 (2011). [126](#), [130](#)
- [134] R. Hertel; Zeitschrift für Metallkunde 93 (10), 957–962 (2002). [127](#)

-
- [135] E. Fullerton, J. S. Jiang, S.D. Bader; J. Magn. Magn. Mat. 200, 392-404 (1999). [129](#), [130](#)
- [136] R. Skomski, J. M. D. Coey, Phys. Rev. B 48, 15812 (1993). [130](#)
- [137] N. Smith, D. Markham, D. LaTourette; J. Appl. Phys. 65, 4362 (1989). [136](#)
- [138] S. D. Kim, J. J. Lee, K. H. Kim, S. H. Lim, H. J. Kim; IEEE Trans. Magn. 35, 5 (1999). [136](#)
- [139] A. Layadi, J. W. Lee, J. O. Artman; J. Appl. Phys. 63, 8 (1988). [136](#)
- [140] M. Imamura, S. Chikazumi; J. Phys. Soc. Japan 24, 648 (1968). [136](#)
- [141] G. C. Bailey, C. Vittoria; Phys. Rev. B 8, 7 (1973). [136](#)
- [142] C. H. Wilts, O. G. Ramer; J. Appl. Phys. 47, 3 (1976). [136](#)
- [143] N. S. Kiselev, I. E. Dragunov, V. Neu, U. K. Rößler, A. N. Bogdanov, J. Appl. Phys. 103, 043907 (2008). [140](#)
- [144] Schaller, Fantozzi y Gremaud: Mechanical Spectroscopy Q^{-1} . Trans Tech Publications, Switzerland Volume 366-368 de Materials Science Forum. (2001). [152](#), [153](#)
- [145] H. A. Colorado Lopera; Fricción Interna en Sistemas Sustrato Metálico-Película de TiN obtenida por pvd; Tesis de Maestría, Universidad Nacional de Colombia; Facultad de Minas Medellín (2004). [153](#)

Trabajos publicados durante el doctorado

Referentes al trabajo de doctorado

1. “*Abnormal temperature dependence of the coercive field in FePt thin films*”.
J.M. Guzmán, N. Álvarez, H.R. Salva, M. Vásquez Mansilla, J. Gómez, A. Butera
J. Mag. Magn. Mater. **347**, 61-67 (2013).
2. “*Relaxation dynamics of ferromagnetic FePt thin films in a broad frequency range*”.
N. Álvarez, G. Alejandro, J. Gómez, E. Goovaerts and A. Butera.
J. Phys. D: Appl. Phys. **46**, 505001 (2013).
3. “*Correlation between magnetic interactions and domain structure in A1 FePt ferromagnetic thin films*”.
N. Alvarez, E. Sallica Leva, R. C. Valente, M. Vasquez Mansilla, J. Gómez, J. Milano, and A. Butera.
J. Appl. Phys. **115**, 083907 (2014).
4. “*Tunable stress induced magnetic domain configuration in FePt thin films*”.
N. R. Álvarez, M. E. Vázquez Montalbetti, J. E. Gómez, A. E. Moya Riffo, M. A. Vicente Álvarez, E. Goovaerts and A. Butera.
J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 405003 (2015).
5. “*Critical thickness for stripe domain formation in FePt thin films: dependence on residual stress*”.
N. R. Álvarez, J. E. Gómez, A. E. Moya Riffo, M. A. Vicente Álvarez and A. Butera.
J. Appl. Phys. **119**, 083906 (2016).

Otros trabajos

1. “*Angular and frequency dependence of standing spin waves in FePt films*”
D. M. Jacobi, E. Sallica Leva, N. Álvarez, M. Vázquez Mansilla, J. Gómez, and A. Butera.
J. Appl. Phys. **111**, 033911 (2012).
2. “*Microwave response of anisotropic magnetorheological elastomers: Model and experiments*”.
A. Butera and N. Álvarez, G. Jorge, M. M. Ruiz, J. L. Mietta, and R. M. Negri.
Phys. Review B **86**, 144424 (2012).
3. “*Spin transport parameters in $Ni_{80}Fe_{20}/Ru$ and $Ni_{80}Fe_{20}/Ta$ bilayers*”.
J. Gómez, B. Zerai Tedlla, N. Álvarez, G. Alejandro, E. Goovaerts, and A. Butera.
Phys. Review B **90**, 184401 (2014).

Trabajos publicados durante el doctorado

Referentes al trabajo de doctorado



Contents lists available at ScienceDirect

Journal of Magnetism and Magnetic Materials

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jmmm

Abnormal temperature dependence of the coercive field in FePt thin films

J.M. Guzmán^a, N. Álvarez^b, H.R. Salva^b, M. Vásquez Mansilla^b, J. Gómez^b, A. Butera^{b,*}^a Facultad de Ciencias Químicas – Universidad Nacional de Córdoba – 5000 Córdoba, Argentina^b Centro Atómico Bariloche (CNEA), Instituto Balseiro (U. N. Cuyo) and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

ARTICLE INFO

Article history:

Received 7 May 2013

Received in revised form

15 July 2013

Available online 2 August 2013

Keywords:

FePt

Thin films

Magnetic anisotropy

Critical thickness

Strain induced anisotropy

ABSTRACT

We have observed notable changes in the magnetic response of FePt thin films that we have attributed to a transition in the magnetic domain structure when the film thickness or the temperature is varied. The critical thickness for this transition depends on the Q -factor, $Q = K_{\perp}/2\pi M_s^2$, so that a change in the domain structure is expected when changes in the perpendicular anisotropy, K_{\perp} , or the saturation magnetization, M_s , occur. At room temperature these samples have $Q \sim 0.3$, and a transition between planar to stripe-like domains occurs for a film thickness $d \sim 30$ nm. Due to the different thermal expansion of the FePt alloy and the Si substrate a reduction in Q is predicted when the temperature is lowered. From magnetization vs. field loops measured at different temperatures below $T = 300$ K, we have effectively observed a change in the coercive field which can be associated to a transition from stripe-like to in-plane domains. The transition temperature range is broad, indicating a gradual variation between the two magnetic configurations, but changes systematically with film thickness, consistent with an interfacial induced stress. A model that includes the temperature dependence of the strain and the magnetization, predicts correctly the observation of a larger critical thickness at lower temperatures.

© 2013 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

FePt alloys of equiatomic composition form in an equilibrium thermodynamic phase of tetragonal symmetry (the chemically ordered fct structure called $L1_0$) which has been extensively investigated in the last years due to the increasing interest in ultrahigh coercivity materials in the magnetic recording industry. This system shows one of the largest known magnetocrystalline anisotropies [1–5] that can be larger than 7×10^7 erg/cm³. Most applications of this alloy are in the form of thin films which tend to grow in a metastable cubic crystalline phase displaying relatively soft magnetic properties [1,6,7]. The saturation magnetization of both crystalline phases is almost the same. Due to the potential technological impact the vast majority of the research was devoted to the high anisotropy alloy and less attention was paid to the so-called A_1 soft magnetic phase.

We have recently reported in a series of works [8–10] in which we have characterized the structural and magnetic properties of FePt thin films at room temperature that they tend to grow with a [111] texture normal to the film plane and with a compressive in-plane stress. These two effects contribute to the appearance of an

anisotropy perpendicular to the film plane, in the case of texture because the [111] is an easy axis for the magnetocrystalline anisotropy and in the case of stress because the negative deformation and the positive magnetostriction coefficient also favor a perpendicular axis of anisotropy.

The competition between the effective perpendicular anisotropy, K_{\perp} , that tends to align the magnetization in the out of plane direction, and the shape anisotropy, that in the case of a thin film favors the in-plane alignment, determines not only the equilibrium orientation of the magnetization vector, but also the structure of the magnetic domains. The ratio between the perpendicular anisotropy energy and the demagnetizing term defines the quality factor, $Q = K_{\perp}/2\pi M_s^2$. Depending on the value of Q and the film thickness it is possible to find: (i) a magnetic domain configuration consisting of in-plane planar domains, (ii) a periodic array of stripes with an out of plane component of the magnetization which alternates between the “up” and “down” directions or, (iii) for $Q > 1$, a bubble-like structure in which the magnetization in each region is completely perpendicular to the film surface. The structure of stripe magnetic domains can only be found in films in which there is a component of the magnetic anisotropy perpendicular to the film plane (i.e. $Q > 0$) and was previously reported in a large number of metallic ferromagnetic materials such as Co [11], FePd [12,13], Co₃Pt [14], or Permalloy (Fe₂₀Ni₈₀) [15,16].

For $Q < 1$ the transition from planar to stripe domains occurs above a critical thickness d_{cr} that depends on the material properties

* Corresponding author. Tel.: +54 294 4445100.

E-mail address: butera@cab.cnea.gov.ar (A. Butera).¹ Instituto de Nanociencia y Nanotecnología, Argentina.

Relaxation dynamics of ferromagnetic FePt thin films in a broad frequency range

N Álvarez¹, G Alejandro¹, J Gómez¹, E Goovaerts² and A Butera¹

¹ Centro Atómico Bariloche (CNEA), Instituto Balseiro (U. N. Cuyo) and Conicet, 8400 San Carlos de Bariloche, Río Negro, Argentina

² Experimental Condensed Matter Physics, Physics Department, University of Antwerp, Universiteitsplein 1, BE-2610 Antwerpen, Belgium

E-mail: butera@cab.cnea.gov.ar

Received 3 June 2013, in final form 11 October 2013

Published 26 November 2013

Online at stacks.iop.org/JPhysD/46/505001

Abstract

The dynamical behaviour of FePt thin films in the chemically disordered fcc phase has been studied using ferromagnetic resonance spectroscopy in a broad range of frequencies, from 1 to 100 GHz. A set of samples with thicknesses between 9 and 94 nm was investigated at room temperature in order to analyse the damping of the magnetization as a function of the excitation frequency. As expected, the increase in frequency is accompanied by larger resonance fields and linewidths. These two quantities also display an anisotropic response when the external applied field is rotated from the in-plane to the out-of-plane direction.

We have observed that in the thicker samples the linewidth is different for fields applied parallel or perpendicular to the film plane which, in principle, should not occur in homogeneous ferromagnetic films. This behaviour could be understood by the presence of a frequency-independent anisotropic inhomogeneous broadening that depends on film thickness, in addition to the Gilbert damping term (α) which gives a linear frequency dependence. Although this last term is in general isotropic, we have measured different values of α for in-plane ($\alpha_{\parallel} = 0.025(1)$) and out-of-plane ($\alpha_{\perp} = 0.021(1)$) geometries. These values of the damping constant are considerably smaller than those previously reported in chemically ordered alloys, at variance with the prediction of recent developed theoretical models.

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

FePt thin-film alloys of equiatomic composition present unique magnetic properties, such as a high coercivity, a high magnetization and a very large magnetocrystalline anisotropy, which could be larger than $5 \times 10^7 \text{ erg cm}^{-3}$ in the $L1_0$ chemically ordered crystalline phase. This system has been extensively studied due to its possible technological applications [1–3]. However, FePt thin films fabricated by sputtering techniques at room temperature tend to grow in a soft magnetic phase (called A1), with the atoms randomly distributed in an fcc structure. Although these films do not have an anisotropy or a coercive field as large as those observed in the ordered phase, they present some remarkable features that make them an interesting system for studying their fundamental properties. In particular, these films show an effective anisotropy perpendicular to the film plane, which is due to the combination of magnetocrystalline anisotropy

(samples grow with a strong $[111]$ texture, which is an easy magnetocrystalline axis) and magnetoelastic effects (as-deposited films have a positive magnetostriction coefficient that induces an easy axis when the sample is under compressive stress) [4–7].

Spin-wave dynamics in FePt alloys have also attracted considerable attention lately [8–10], and a correct estimation of the damping parameter α is of crucial importance for the application of this alloy to magnonic devices. Chemically disordered FePt thin films often show a critical thickness d_{cr} that defines the transition from planar to stripe-like magnetic domains. The value of this critical thickness depends on the quality factor, $Q = K_{\perp}/2\pi M_s^2$, defined as the ratio between the component of the anisotropy perpendicular to the film plane and the shape anisotropy. If the energy associated to the perpendicular anisotropy is less than the shape demagnetizing energy, that is $Q < 1$, it is then expected that the magnetization stays essentially in the film plane. However, if the film is



Correlation between magnetic interactions and domain structure in A1 FePt ferromagnetic thin films

N. Álvarez,¹ E. Sallica Leva,¹ R. C. Valente,¹ M. Vásquez Mansilla,¹ J. Gómez,¹ J. Milano,² and A. Butera^{2,a)}

¹Centro Atómico Bariloche (CNEA) and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

²Centro Atómico Bariloche (CNEA), Instituto Balseiro (U. N. Cuyo), and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

(Received 14 November 2013; accepted 11 February 2014; published online 26 February 2014)

We have investigated the relationship between the domain structure and the magnetic interactions in a series of FePt ferromagnetic thin films of varying thickness. As-made films grow in the magnetically soft and chemically disordered A1 phase that may have two distinct domain structures. Above a critical thickness $d_{cr} \sim 30$ nm the presence of an out of plane anisotropy induces the formation of stripes, while for $d < d_{cr}$ planar domains occur. Magnetic interactions have been characterized using the well known DC demagnetization - isothermal remanent magnetization remanence protocols, δM plots, and magnetic viscosity measurements. We have observed a strong correlation between the domain configuration and the sign of the magnetic interactions. Planar domains are associated with positive exchange-like interactions, while stripe domains have a strong negative dipolar-like contribution. In this last case we have found a close correlation between the interaction parameter and the surface dipolar energy of the stripe domain structure. Using time dependent magnetic viscosity measurements, we have also estimated an average activation volume for magnetic reversal, $\langle V_{ac} \rangle \sim 1.37 \times 10^4$ nm³, which is approximately independent of the film thickness or the stripe period. © 2014 AIP Publishing LLC. [<http://dx.doi.org/10.1063/1.4866685>]

I. INTRODUCTION

Ferromagnetic thin films exhibiting a magnetic domain structure in the form of thin parallel stripes have been the subject of intense research in the last few decades, both experimentally^{1–6} and theoretically.^{7–11} This kind of structure is observed in films that present an out of plane anisotropy component (due to stress, crystalline texture, interfacial, or other effects) and in a simplified picture it can be described as a periodic pattern of parallel in-plane magnetized regions in which the magnetization has a relatively small component that points alternatively in the two directions that are normal to the film plane. A stripe (or bubble) pattern is generally observed for all film thicknesses when the perpendicular anisotropy energy constant, K_{\perp} , is larger than the demagnetizing shape energy, $2\pi M_s^2$, (M_s is the saturation magnetization) but can also be found below a critical thickness d_{cr} when $Q = K_{\perp}/2\pi M_s^2$ is smaller than one. The transition from planar to stripe domains at $d = d_{cr}$ is due to the minimization of the total magnetic energy which can include the contribution of anisotropy, demagnetizing, domain wall and Zeeman (for $H \neq 0$) terms. The critical thickness depends on the material properties such as the effective anisotropy, the saturation magnetization and the exchange stiffness constant, and also on the external field. There are several models for the calculation of d_{cr} , see for example Refs. 9–11, that predict larger values of d_{cr} in materials with a large saturation magnetization, a large exchange, or a small

anisotropy. The value of the critical thickness is in the range of 20–30 nm for Co,² partially ordered FePd,³ or disordered FePt films,^{5,12–17} and can take larger values (of the order of 200 nm) in films with lower anisotropy such as permalloy.¹⁸ Films with stripe domains have characteristic M vs. H in-plane loops in which the following features are often observed:^{5,8} (i) the low field part of the curve increases almost linearly from remanence until the saturation field is reached. This in-plane saturation field was shown to increase with film thickness following approximately the relationship $H_{sat\parallel} = H_{sat\perp} [1 - d_{cr}/(d\sqrt{1+Q})]$, with $H_{sat\perp} = 2K_{\perp}/M_s$. (ii) Due to the formation of the stripe structure the in-plane coercivity increases abruptly and the remanence decreases considerably above d_{cr} . (iii) For $d \geq d_{cr}$ rotatable anisotropy, i.e., the alignment of the stripe structure at remanence in the direction of a previously applied field, is observed. The magnitude of this anisotropy also increases with film thickness and is usually characterized by a field H_{rot} . (iv) The period of the stripe structure increases approximately as the square root of the film thickness, $\lambda_s \propto \sqrt{d}$.

The study of the magnetic interactions present in films in which a crossover from a planar to a striped magnetic domain structure is observed can then give a deeper insight to understand this behavior. Both Henkel plots¹⁹ and delta- M (δM) curves,^{20,21} together with the magnetic viscosity, S ,^{22,23} can be used to estimate the sign of the magnetic interactions and the magnetic reversal volumes in the samples. Magnetic interactions have been widely studied in small particles,²⁴ thin continuous films,²⁴ granular systems,²⁵ and nanostructured films²⁶ using magnetic remanence measurements.

^{a)}Also at INN - Instituto de Nanociencia y Nanotecnología. Electronic mail: butera@cab.cnea.gov.ar.

Tunable stress induced magnetic domain configuration in FePt thin films

N R Álvarez¹, M E Vázquez Montalbetti², J E Gómez¹, A E Moya Riffo¹,
M A Vicente Álvarez¹, E Goovaerts³ and A Butera^{4,5}

¹ Centro Atómico Bariloche (CNEA) and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

² Ingeniería Química, Facultad Regional Villa María, Universidad Tecnológica Nacional, 5900 Córdoba, Argentina

³ Experimental Condensed Matter Physics, Physics Department, University of Antwerp, Universiteitsplein 1, BE-2610 Antwerpen, Belgium

⁴ Centro Atómico Bariloche (CNEA), Instituto Balseiro (U. N. Cuyo) and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

E-mail: butera@cab.cnea.gov.ar

Received 23 April 2015, revised 5 August 2015

Accepted for publication 18 August 2015

Published 17 September 2015



Abstract

We present a study of the magnetic properties of chemically disordered ferromagnetic FePt films of 100 nm thickness that have been grown by sputtering with different Ar pressures ($3 \text{ mTorr} \leq P_{\text{Ar}} \leq 13 \text{ mTorr}$). We found that the residual stress can be controlled by the sputtering pressure, which in turn allows to tune the perpendicular magnetic anisotropy due to magnetoelastic effects. Films deposited at lower Ar pressures display an in-plane compressive stress that favors an out of plane component of the magnetization and the formation of a magnetic domain structure in the form of stripes. For higher pressures the stress is relaxed and the magnetic configuration changes to planar domains. These results show the possibility to accurately tune the initial magnetic state in films with potential applications in magnetoelectrically coupled devices.

Keywords: FePt, thin films, magnetoelastic effects, stripe domains

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Renewed interest in magnetically soft magnetostrictive Fe alloys (for example FeGa, FeCo, FePt and FePd) appeared recently because of potential applications in magnetoelectrically coupled devices [1–4], which combine a ferromagnetic film with a piezoelectric substrate in order to control the magnetic anisotropy of the ferromagnet using electric fields. These heterostructures can be used as bistable magnetoelectric memory devices [4] as well as tunable microwave components, such as filters, attenuators, phase-shifters or resonators [1–3]. In particular, FePt has a relatively narrow ferromagnetic absorption line and a considerably large magnetostriction and saturation magnetization. In combination with PMN-PT ($\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$) piezoelectric

wafers, magnetoelectric couplings of several tens of Oe.cm/kV in the microwave region have been reported [3]. However, the magnetoelectric response was not the same in similar systems (see for example [3] and [4]), which may be due to the effect of different growing conditions on the initial magnetic state.

FePt alloys of equiatomic composition are formed in an equilibrium thermodynamic phase of tetragonal symmetry, the chemically ordered fct structure called $L1_0$, consisting of successive layers of Fe and Pt. Their properties have been extensively studied in the last years as a result of the increasing interest in ultrahigh coercivity materials in the magnetic recording industry. On the other hand, FePt thin films deposited at room temperature tend to grow in a chemically-disordered magnetically-soft fcc phase called $A1$, with potential applications in magnetoelectronics. The magnetic anisotropy and domain structure of these films have been

⁵ Also at INN: Instituto de Nanociencia y Nanotecnología



Critical thickness for stripe domain formation in FePt thin films: Dependence on residual stress

N. R. Álvarez,¹ J. E. Gómez,¹ A. E. Moya Rizzo,¹ M. A. Vicente Álvarez,¹ and A. Butera^{2,a)}

¹Centro Atómico Bariloche (CNEA) and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

²Centro Atómico Bariloche (CNEA), Instituto Balseiro (U. N. Cuyo), and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

(Received 23 October 2015; accepted 12 February 2016; published online 25 February 2016)

Magnetically soft FePt thin films of varying thickness ($20 \text{ nm} \leq d \leq 100 \text{ nm}$) were sputter-deposited at different Ar pressures in order to systematically modify the residual stress and hence the magnetic anisotropy. The magnetic domain structure of FePt thin films showed a transition from planar to nearly parallel stripes above a critical thickness, d_{cr} , which was found to depend on an anisotropy contribution perpendicular to the film plane, originated essentially in magnetoelastic effects. A careful structural characterization was made in order to obtain the strain and the stress induced magnetic anisotropy in the samples. Vibrating sample magnetometry and magnetic force microscopy were used to investigate the changes occurring in the magnetic domain structure and the critical thickness of each set of films. Joining together structural and magnetic results, we have been able to construct a phase diagram that divided regions of different domain structures, either by changing the film thickness or the perpendicular magnetic anisotropy. The experimental results could be satisfactorily explained by using a model developed by Murayama. The observed dependence of the magnetic properties of soft FePt thin films on the fabrication conditions opens the possibility to tune the magnetic domain configuration from planar to stripe-like domains by changing the argon sputtering pressure used during film deposition. © 2016 AIP Publishing LLC.

[<http://dx.doi.org/10.1063/1.4942652>]

I. INTRODUCTION

Novel magnetoelectric devices, such as tunable microwave components, filters, attenuators, phase-shifters, or resonators,^{1–3} can be designed by the smart combination of a ferromagnetic film with a piezoelectric substrate in order to control the magnetic anisotropy of the ferromagnet using electric fields. The ferromagnets needed for these applications should be magnetically soft and possess a large magnetostriction constant. Interest in soft Fe alloys (for example, FeGa, FeCo, FePt, and FePd) reappeared recently because of potential applications in magnetoelectrically coupled devices. In particular, FePt equiatomic alloy films have a relatively narrow ferromagnetic absorption line and a considerably large magnetostriction and saturation magnetization. These films can be sputtered on piezoelectric wafers, such as PMN-PT ($\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$), to display magnetoelectric couplings of several tens of Oe.cm/kV in the microwave region.³ However, it was found that the magnetoelectric response was different in similar materials (see, for example, Refs. 3 and 4), which indicates the need to study and control in more detail the effects of different growing conditions on the initial magnetic state.

FePt thin films grown by sputtering techniques usually form in a chemically disordered phase (called A1) with relatively soft magnetic properties. These films show a critical thickness above which the magnetic domains change from a planar to a stripe-like configuration.⁵ The stripe pattern is

induced by a perpendicular magnetic anisotropy, called K_{\perp} , originated by the combined contributions of magneto-crystalline energy and magneto-elastic effects.⁵

The critical thickness above which the magnetic domain configuration changes from planar to stripe-like domains strongly depends on the ratio between K_{\perp} and the demagnetizing energy. This ratio is known as the quality factor $Q = K_{\perp}/2\pi M_s^2$, being M_s the saturation magnetization of the material. As a general rule, if $Q > 1$, the perpendicular anisotropy is strong enough to align the magnetization normal to the film plane and if $Q < 1$, the competition between the two energies results in a magnetization that stays essentially in the film plane, but has an alternating component in the normal direction.⁶ It is possible to modify K_{\perp} , and consequently Q , through the modification of the crystalline texture or the residual stress in the samples. Several authors have already shown that it is possible to control the residual stress of thin layers by varying the conditions of the thin film deposition process, in particular, the Ar pressure (P_{Ar}) inside the sputtering chamber.^{7–10}

Different magnetic properties of FePt single layers fabricated with the same growing conditions have been previously characterized by our group as a function of film thickness. In particular, we have studied the changes in the domain configuration,^{5,11} the effects of temperature on the magnetic structure,^{12,13} the dynamical response,^{14–16} and the presence of standing spin waves.¹⁷ There are also studies in which the film thickness remains fixed and the residual stress is changed by modifying the growing conditions.^{7,10} In this work, we report a detailed investigation of the structural

^{a)}Also at INN - Instituto de Nanociencia y Nanotecnología, Argentina. Electronic mail: butera@cab.cnea.gov.ar.

Otros trabajos

Angular and frequency dependence of standing spin waves in FePt films

D. M. Jacobi,¹ E. Sallica Leva,² N. Álvarez,² M. Vázquez Mansilla,² J. Gómez,²
and A. Butera^{2,3,a)}

¹Universidad Tecnológica Nacional, 3100 Paraná, Entre Ríos, Argentina

²Centro Atómico Bariloche (CNEA), 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

³Instituto Balseiro (U. N. Cuyo), 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

(Received 31 August 2011; accepted 4 January 2012; published online 9 February 2012)

We present a detailed analysis of the dynamic response of the magnetization in as-made FePt thin films, particularly studying the angular dependence of standing spin waves that can be observed when the external field is applied close to the film normal. We have found that the field separation between the uniform and the first excited mode depends strongly on angle and microwave frequency. To explain the observed behavior we have adopted the surface inhomogeneity model in the circular precession approximation. Using this model the experimental data could be very well fitted assuming that spins are not totally pinned at the surfaces by introducing a finite surface anisotropy. The experimental angular behavior of the resonance field at three different frequencies could be fitted with a single set of parameters indicating that the reported changes in the surface anisotropy as a function of film thickness are intrinsic to the samples. © 2012 American Institute of Physics. [doi:10.1063/1.3682104]

I. INTRODUCTION

In the last years equiatomic FePt alloys have been intensively studied in different confined forms in which one or more dimensions are reduced to the nanometer scale.^{1–4} Particularly, metastable disordered FCC thin films, phase which generally forms when films are fabricated at room temperature, present a very rich variety of magnetic properties. Despite not having a large magnetocrystalline anisotropy or a high coercivity as the ordered phase, these films show a relatively small uniaxial effective anisotropy perpendicular to the film plane ($K_{\perp} \sim 1.5 \times 10^6$ erg/cm³). The origin of this out-of-plane anisotropy is due to the combined effects of magnetocrystalline anisotropy (samples grow with a [111] texture perpendicular to the film plane)⁵ and magnetoelastic energy (as-deposited films form under in-plane compressive stress which induces a perpendicular easy axis).

Disordered FePt thin films, and also similar alloys like FePd and CoPt, often show a stripe-like magnetic domain structure. This kind of magnetic structure is due to the presence of a uniaxial perpendicular anisotropy which competes with the demagnetizing energy. It is generally observed that below a critical thickness, d_{cr} , that depends on the so-called Q -factor, $Q = K_{\perp}/2\pi M_s^2$, the magnetization lies in the plane of the film. Thicker films, on the other hand, present a small out-of-plane component of the magnetization which periodically changes from the “up” to the “down” direction inducing the formation of a stripe structure. Values of the critical thickness are in the range of 20–30 nm for FePt (Refs. 1 and 5) and also for FePd.⁶

Ferromagnetic resonance in these alloys have been reported either in the saturated^{7–12} or the unsaturated state.¹³

Apart from the uniform resonance mode, several additional lines have been observed in thin films. These absorptions have been attributed to standing spin waves,^{7,9,12} domain mode ferromagnetic resonance (FMR) corresponding to FMR within domains,⁸ and domain wall resonances due to collective modes of domain wall vibrations.⁸

Our group has previously reported the observation and the analysis of additional resonance lines in a set of disordered FePt films that were assigned to standing spin waves (SSW).^{10,12} From those studies it was possible to establish that a single value of the perpendicular anisotropy K_{\perp} and the exchange stiffness constant A could be used to describe the thickness behavior of all studied films. However, we observed variations of the surface anisotropy K_s and a change of the magnetization in the presurface layer $\partial_n M$, which needed to be further studied in order to elucidate the reasons for these changes with the film thickness. We present in this work FMR studies in a set of thin films with thicknesses in the range 28–100 nm focusing the attention on the analysis of the angular and frequency dependence of the SSWs. In this case, the dynamic response of the samples has been measured at three different frequencies and the angular behavior of the SSW spectra close to the film normal was carefully analyzed. Results, modeling, and conclusions are presented in the following sections.

II. EXPERIMENTAL DETAILS

The films used in this study are the same samples that we have used for the FMR experiments in Ref. 12. In short, as-made disordered FePt films have been fabricated by dc magnetron sputtering on naturally oxidized Si (100) substrates. The samples were deposited from an FePt alloy target with a nominal atomic composition of 50/50. The chamber was pumped down to a base pressure of 10^{-7} Torr and the films were sputtered using 2 mTorr of Ar pressure, a

^{a)}Author to whom correspondence should be addressed. Electronic mail: butera@cab.cnea.gov.ar. Also at: Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas, Argentina.

Microwave response of anisotropic magnetorheological elastomers: Model and experiments

A. Butera* and N. Álvarez

Centro Atómico Bariloche (CNEA) and Instituto Balseiro (U. N. Cuyo), 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

G. Jorge

Departamento Física, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad de Buenos Aires, Argentina

M. M. Ruiz, J. L. Mietta, and R. M. Negri

INQUIMAE, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad de Buenos Aires, Argentina

(Received 10 August 2012; published 31 October 2012)

We present ferromagnetic resonance measurements of Fe_3O_4 nanoparticles which have been dispersed in an elastomeric polymer [polydimethylsiloxane (PDMS)] at two different concentrations (5% and 15% w/w), and then cured in the presence of a uniform magnetic field. With this procedure it is possible to align the particles forming unidimensional needlelike cylindrical agglomerates with a relatively high length/diameter ratio. The dynamical response of this nanostructured composite has been characterized using ferromagnetic resonance at K band (24 GHz) and Q band (34 GHz). In both cases we have observed an anisotropic behavior in the resonance field when the external magnetic field is rotated from the direction of the needles to the perpendicular plane. However, the measured variation is considerably lower than the values expected for an array of perfectly homogeneous long cylinders in which the elongated shape causes a uniaxial anisotropy. Results have been analyzed using the standard Smit and Beljers formalism, considering a phenomenological shape factor, P , that accounts for the reduced anisotropy. Also an ellipticity factor in the cross section of the needles, r , and Gaussian fluctuations of the shape factor, σP , are needed to explain the observed angular variation of the linewidth. The values of these parameters are consistent with data obtained at K and Q bands, supporting the proposed model, although some differences have been found for the two studied concentrations.

DOI: 10.1103/PhysRevB.86.144424

PACS number(s): 76.50.+g, 75.30.Gw, 75.75.-c, 75.50.Tt

I. INTRODUCTION

Iron oxides, and particularly magnetite (Fe_3O_4), have been extensively studied since research in magnetic materials started. Magnetite crystallizes in a spinel structure and orders ferromagnetically below 840 K with a saturation magnetization $M_s \sim 480 \text{ emu/cm}^3$ when in bulk form.¹ This material was also studied in systems with reduced dimensions, particularly nanoparticles,^{2–4} thin films,⁵ and structured multilayers⁶ in order to induce new magnetic characteristics, absent in bulk samples. These engineered materials, with novel magnetic properties, open a broad spectrum of new potential applications. One of these engineered systems consists in the preparation of magnetorheological elastomers (MRE), in which magnetic nanoparticles are dispersed in an organic elastic matrix and then cured in the presence of an external applied field in order to induce anisotropic transport and magnetic properties. These elastomeric polymers are very attractive due to their potential use in flexible electronics, including pressure and magnetic field sensors. For these applications oxide nanoparticles (typically Fe_3O_4 or CoFe_2O_4) are agglomerated and then covered with a metallic shell, such as Ag, forming a core/shell structure of micrometer size.^{7,8} When the particles are introduced in a polymer matrix and then cured in the presence of a magnetic field, they tend to align in the shape of needlelike elongated cylinders with a morphological length/diameter aspect ratio in the range of 100, which is responsible for the observed anisotropic magnetic response.

We have performed a detailed study using ferromagnetic resonance (FMR) techniques in order to get a deeper un-

derstanding of the observed magnetic behavior and correlate these results with the microstructure of the composite. This technique is specially suitable for the determination of magnetic anisotropies and the distribution of magnetic parameters, through the analysis of the resonance field, the linewidth, and the line shape.

II. EXPERIMENTAL DETAILS

The synthesis of the magnetic particles and the preparation of the MRE was explained in detail in Ref. 7. Briefly, Fe_3O_4 nanoparticles were obtained by chemical coprecipitation of a solution of hydrated FeCl_3 and FeCl_2 in HCl mixed with NaOH. After several steps of washing and centrifugation, it was possible to obtain magnetite nanoparticles of the correct crystalline phase with an average diameter of 13 nm and a relatively narrow size distribution. The particles were then dispersed in a polydimethylsiloxane (PDMS) matrix and cured at 75 °C for 4 h in the presence of a uniform dc magnetic field of 3000 Oe. As already mentioned, the magnetite nanoparticles tend to agglomerate forming needlelike cylinders. Two different dispersions, 5% and 15% w/w Fe_3O_4 in PDMS, were prepared to account for possible effects of interactions among needles. The average diameter, length, and separation among cylinders are 51 μm , 3 mm, 100 μm for Fe_3O_4 :PDMS 15%, and 20 μm , 3 mm, 120 μm for Fe_3O_4 :PDMS 5%. As can be seen in Fig. 1 (and in more detail in Fig. 4 of Ref. 7) the cylinders have a granular texture and their cross section is generally elliptical with a transverse aspect ratio that can be higher than 2.

Spin transport parameters in $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ru}$ and $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ta}$ bilayersJ. E. Gómez,^{1,*} B. Zerai Tedlla,² N. R. Álvarez,¹ G. Alejandro,¹ E. Goovaerts,² and A. Butera³¹Centro Atómico Bariloche, Instituto de Nanociencia y Nanotecnología (CNEA) and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina²Experimental Condensed Matter Physics, Physics Department, University of Antwerp, Universiteitsplein 1, BE-2610 Antwerpen, Belgium³Centro Atómico Bariloche, Instituto de Nanociencia y Nanotecnología (CNEA), Instituto Balseiro (U. N. Cuyo), and Conicet, 8400 Bariloche, Río Negro, Argentina

(Received 29 May 2014; revised manuscript received 16 October 2014; published 3 November 2014)

We present a systematic study of the spin transport properties in two different bilayer systems, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ru}$ and $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ta}$, combining ferromagnetic resonance (FMR) and inverse spin Hall effect (ISHE) voltage measurements. We have estimated the effective spin mixing conductance $g^{\uparrow\downarrow}$ by analyzing the permalloy (Py) thickness dependence of the FMR linewidth obtaining $g^{\uparrow\downarrow} = (3.8 \pm 0.7) \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ and $g^{\uparrow\downarrow} = (1.3 \pm 0.4) \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ for Py/Ru and Py/Ta, respectively. Analyzing the Ta thickness dependence of the ISHE voltage, we have been able to extract the spin diffusion length, $\lambda_{SD} = 1.5 \pm 0.5 \text{ nm}$, and spin Hall angle, $\Theta_{SH} = -0.03 \pm 0.01$, of Ta. From the two series of Py/Ta bilayers—with thickness variation of ferromagnetic and nonmagnetic layers, respectively—we demonstrate a path to estimate the spin diffusion length from the experimental data, independent of the spin Hall angle and the microwave field amplitude.

DOI: 10.1103/PhysRevB.90.184401

PACS number(s): 81.15.Cd, 76.50.+g, 75.70.Tj, 75.40.Gb

I. INTRODUCTION

The manipulation of the charge and spin degrees of freedom in electron transport has attracted continuous interest in the scientific community for many decades, with a remarkable and persistent revival since the early 1990s [1]. In recent years, the feasibility of spin pumping from a ferromagnetic (FM) layer towards an adjacent nonmagnetic metallic film (NM) was demonstrated in the form of a pure spin current [2,3], which opened paths for the research in several new and novel phenomena in this area [4]. The ability of some metals, like Pt, Pd, or Ta, among others, to convert a spin current into a charge current via the inverse spin Hall effect (ISHE) opens the way to not only qualitative but also quantitative investigation and understanding of the spin transport that takes place in this kind of system.

Earlier studies on inverse spin Hall voltage induced by spin pumping in FM/NM bilayers were carried out using preferably Pt as the NM layer because of its large spin orbit interaction. But several NM metals, like Pd, Mo, Au, and Ta, among others, have been used to demonstrate the spin Hall effect in such metals [5,6]. Applying the theory developed to describe this phenomenon, it is possible to estimate different parameters like the spin diffusion length, the spin Hall angle, or the effective spin mixing conductance. Some of these parameters have a broad range of reported values that depends mainly on the method used for their estimation. For example, spin diffusion length values found for Pt range roughly from 0.5 nm [7] to 10 nm [8]. This broad range can be also explained by spin memory loss effects occurring at the interface [9].

In the following sections we present a detailed study of two different systems of bilayers of permalloy (Py) with Ru and Ta, characterized as a function of the thickness of the FM and/or the NM layer. We show that Ru can effectively be used to detect a spin current by measuring the voltage generated by the inverse spin Hall effect. For both systems we have estimated

the effective spin mixing conductance parameter, $g^{\uparrow\downarrow}$. In the case of the Py/Ta bilayer we present a set of spin transport parameters estimated from the Py thickness dependence of the FMR spectra and the inverse spin Hall voltage as a function of the thickness of both the NM and the FM layer. We finally describe a simple method for determining the spin diffusion length independent of the spin Hall angle.

II. FILM FABRICATION AND STRUCTURAL CHARACTERIZATION

Films have been fabricated by dc magnetron sputtering on naturally oxidized Si (100) substrates. The chamber was pumped down to a base pressure of 1×10^{-6} Torr and the films were sputtered at 3 mTorr of Ar pressure, a power of 20 W, and a target-substrate distance of 10 cm. With these parameters we obtained a sputtering rate of 0.06, 0.11, and 0.15 nm/s for Ru, Py, and Ta, respectively. Two different series were grown keeping fixed the NM layer: $t_{\text{Ru}} = 10 \text{ nm}$ and $t_{\text{Ta}} = 5 \text{ nm}$ and varying the thickness of the Py layer, $t_{\text{Py}} = 5, 7, 9$, and 11 nm. Complementarily, another series was grown with different Ta layer thickness, $t_{\text{Ta}} = 2, 5, 8$, and 11 nm, and with Py thickness $t_{\text{Py}} = 10 \text{ nm}$ (see Table I). Our sputtering machine can host several substrates at the same time, allowing one to deposit a complete series in exactly the same sputtering conditions. In the case of Ta films the sputtering variables were optimized in order to promote the growth of the crystallographic β phase, as confirmed by x-ray diffraction patterns performed on 133 nm reference films, with a high electrical resistivity ($\rho \sim 2000 \Omega \text{ nm}$). Although there is a tendency in very thin Ta films to grow in an amorphous phase, there are several reports in which it is shown that by choosing the correct sputtering conditions the β phase is dominant down to thicknesses of a few nanometers [10–13]. However, possible mixing of both phases should not be totally discarded, especially in the thinnest samples studied in this work ($t_{\text{Ta}} = 2 \text{ nm}$).

FMR spectra were acquired at room temperature with a commercial Bruker ESP 300 spectrometer at frequencies of

*gomezj@cab.cnea.gov.ar

Agradecimientos

En primer lugar quiero agradecer a mi director Alejandro Butera. No tengo palabras para expresar mi reconocimiento por la infinita paciencia, buena disposición y apoyo que siempre me ha demostrado. Una de las muchas cosas que me ha enseñado es la de no tener miedo a “no saber”. Nadie sabe todo lo que hay que saber de la física, aceptarlo es abrir la cabeza y estar preparado para aprender lo más que se pueda. Después de todo, lo más divertido y apasionante de esta profesión es la posibilidad de estar aprendiendo cosas nuevas todos los días.

Agradezco cordialmente a Conicet, por otorgarme la beca que hizo posible dedicarme al doctorado estos años y al Laboratorio de Resonancias Magnéticas, por darme un lugar de trabajo. En particular, quisiera mencionar a Javier Gómez por su ayuda en el *sputtering* y el MOKE, a Fede Fernández Baldis por enseñarme a usar el AFM/MFM, a Horacio Salva quién me asistió en las mediciones de lámina vibrante y a Javier Curiale, al cual le agradezco haber sido un corrector tan dedicado y entusiasta. Como no todo en la vida es trabajo, también quiero agradecer a Betiana, Jesús, Virginia, Mary y Gerardo por compartir sus charlas y mates conmigo. Por último, a mis compañeras de oficina, las cuales no solo me ayudaron con innumerables consultas acerca de los más variados temas (uso de los equipos, trámites en el Conicet, problemas en la computadora, Látex y un largo etc!), sino que su buena onda y apoyo hace que sea un placer ir a trabajar todos los días.

Tengo una gran deuda de gratitud con mi co-director Etienne quien hizo posible mi estadía en Bélgica, una de las experiencias más gratificantes que he tenido. Además, mi más sincero cariño a mis compañeros en el Laboratorio de Física: Bert, Shashi, Valentina, Biniam y Joeri. Ellos hicieron que mi tiempo en Amberes fuera no solo provechoso en el ámbito académico sino muy divertido, haciéndome sentir cómoda e involucrándome con la cultura inmensamente rica de la región de Flandes. Es necesario destacar en este párrafo a las personas que me ayudaron con la parte burocrática: Natalia Cabuccio en el Instituto Balseiro y Hilde Evans de parte de la Universidad de Amberes. Ambas, de forma más que amable y eficiente, supieron orientarme y resolver todos los trámites que fueron necesarios.

También quiero mencionar a Álvaro Moya y a Miguel Vicente Álvarez del Grupo Física de Neutrones, los cuales formaron parte activa de un buen número de medidas

en el difractor de Rayos-X y me brindaron de la forma más amable su tiempo y conocimiento. En especial tengo que mencionar a Álvaro por su ayuda en la toma y análisis de datos y la revisión de algunos párrafos de la tesis. Pero también, y por sobre todo, por acompañarme y saber hacerme reír cuando todo el estrés de estos últimos meses me empezaba a pesar!

Por último y de la forma más afectuosa, quiero agradecer a mis padres, a los cuales extraño cada día. No puedo explicar lo mucho que me hubiera gustado que estuvieran cuando me recibí de Licenciada en Física, y qué no daría por tenerlos a mi lado ahora. Siempre se preocuparon por enseñarme que la educación es lo más importante, y estoy segura que mi camino no hubiera sido el mismo de otra forma. Este camino, que me llevó a una vida muy feliz.